



Pro gradu -tutkielma
Materiaalitutkimuksen maisteriohjelma
Fysiikka

Efficiency Transfer – menetelmän käyttö ympäristönäytteiden
gammaskpektrometriassa

Eetu Uusikylä
11.9.2020

Ohjaaja(t):
FT Roy Pöllänen (STUK)
FT Merja Blomberg

Tarkastaja(t):
Prof. Simo Huotari
FT Merja Blomberg

HELSINGIN YLIOPISTO
MATEMAATTIS-LUONNONTIETEELLINEN TIEDEKUNTA
PL 64 (Gustaf Hällströmin katu 2a)
00014 Helsingin yliopisto

Tiedekunta – Fakultet – Faculty		Koulutusohjelma – Utbildningsprogram – Degree programme	
Matemaattis-luonnontieteellinen		Materiaalitutkimuksen maisteriohjelma Fysiikka	
Tekijä – Författare – Author			
Eetu Uusikylä			
Työn nimi – Arbetets titel – Title			
Efficiency Transfer – menetelmän käyttö ympäristönäytteiden gammaspektrometriassa			
Työn laji – Arbetets art – Level		Aika – Datum – Month and year	Sivumäärä – Sidantal – Number of pages
Pro gradu -tutkielma		11.9.2020	63
Tiivistelmä – Referat – Abstract			
<p>Gammaspektrometria on menetelmä gammasäteilyn havaitsemiseen ja sen analysoimiseen. Menetelmää sovelletaan Säteilyturvakeskuksen (STUK) gammalaboratoriossa, jossa mitataan ympäristönäytteiden aktiivisuutta ja radionuklidikoostumusta. Mittaustulosten analysoinnissa tarvitaan tehokkuuskalibroitua, jossa määritetään mitattavan lähteen emittoimien fotonien ja rekisteröityjen pulssien välinen suhde.</p> <p>Työssä selvitettiin EFFTRAN -nimisen ohjelman soveltuvuutta osaksi gammaspektrometrinen mittausten analyysiprosessia. EFFTRAN perustuu Efficiency Transfer –menetelmään (ET), jossa analysoidun näytteen piikkitehokkuuskäyrä johdetaan kokeellisesti määritetystä standardilähteen piikkitehokkuuskäyrästä. EFFTRAN ottaa kalibroitaisiirroissa huomioon näytteen alkuainekoostumuksen, mikä vaikuttaa fotonien piikkitehokkuuteen alle 100 keV:n energioilla.</p> <p>Työn ensimmäinen tavoite oli osoittaa, että EFFTRANin avulla saadaan yhteneviä tuloksia nykyisten laskentamenetelmien kanssa. Sen jälkeen kalibroitaisiirtojen avulla laskettuja aktiivisuuspitoisuuksia verrattiin tunnettuihin referenssilähteiden aktiivisuuspitoisuuksiin. Viimeisessä vaiheessa tarkasteltiin alkuainekoostumuksen vaikutusta gamma-analyysien tuloksiin. EFFTRANin kalibroitaisiirtojen avulla saatiin pääosin oikeita tuloksia, joten niitä voitaisiin jatkossa käyttää gamma-analyysissa kokeellisten tehokkuuskalibroitien rinnalla.</p>			
Avainsanat – Nyckelord – Keywords			
Efficiency Transfer, EFFTRAN, gammaspektrometria, gamma-analyysi, STUK			
Säilytyspaikka – Förvaringsställe – Where deposited			
Muita tietoja – Övriga uppgifter – Additional information			

Sisältö

1	Johdanto	1
2	Teoria	3
2.1	Vuorovaikutukset	3
2.2	Vaimennuskerroin	4
2.3	Piikki- ja kokonaistehokkuus	7
2.4	Koinsidenssisummautuminen	9
2.5	Korjaustermit	13
2.6	Hukka-aika ja hajoaminen mittausaikana	14
2.7	Itseabsorptio	15
3	Ohjelmistot ja menetelmät	17
3.1	Efficiency Transfer -menetelmä	17
3.2	EFFTRAN	19
3.3	NAMIT	20
3.4	UniSAMPO-Shaman	22
4	Mittaukset	24
4.1	Mittauksetilat ja laitteisto	24
4.2	Mittausjärjestelmän ominaisuudet	25
4.3	Näytegeometriat ja -luokat	26
4.4	Purkitus	27
4.5	Tehokkuuskalibrointi	28
4.6	Signifikanssi ja havaitsemisraja	29
4.7	Tehokkuuden epävarmuus	30
5	Analyysien tulokset	32
6	Tehokkuuksien vertailu	35
7	Aktiivisuuksien vertailu	40

8	Vertaaminen referenssilähteeseen	42
8.1	Vesinäyte W19	46
8.2	Vesinäyte T20	47
8.3	Merivesinäyte 12550Ro	48
8.4	Kvartsihiekkänäytteet 7583D ja 7539A	49
8.5	Lasikuitusuodatin T9	50
8.6	Lasikuitusuodatin T18	51
8.7	Lasikuitusuodatin T20	52
8.8	Lasikuitusuodatin W5	53
9	Näytteen alkuainekoostumus	54
9.1	^{210}Pb	55
9.2	^{137}Cs ja ^{40}K	56
10	Johtopäätökset	58
	Liitteet	i
A	Ilmaisimien ominaisuudet	i
B	Alkuainekoostumuksia	ii
C	Luvun 9 analyysien tulokset	vi

1 Johdanto

Gammaspektrometria on gammasäteilyn havaitsemiseen perustuva menetelmä, jonka avulla pystytään tutkimaan radioaktiivisia aineita sisältävien näytteiden aktiivisuutta ja radionuklidikoostumusta. Radioaktiiviset aineet voidaan tunnistaa rekisteröimällä näytteen emittoimaa gammasäteilyä ja analysoimalla kyseisen säteilyn energiajakaumaa. Gammaspektrometriassa radionuklidin aktiivisuus saadaan määritettyä yhdellä mittauksella. Menetelmää sovelletaan muun muassa Säteilyturvakeskuksessa (STUK) ympäristön säteilyvalvontaosastolla, jossa mitataan ympäristönäytteiden aktiivisuutta.

Tehokkuuskalibroinnissa määritetään mitattavan lähteen emittoimien fotonien ja rekisteröityjen pulssien välinen suhde. Tehokkuus riippuu fotonin energiasta ja mittausgeometriasta, sekä fotonin vuorovaikutuksista näyttemateriaalin ja ilmaisimen kanssa. Tehokkuuden ja erilaisten korjauskertoimien avulla määritetään analysoitavan nuklidin aktiivisuus ja aktiivisuuden epävarmuus. Tehokkuuskalibrointi on yksinkertaisinta silloin, kun se tehdään analysoitavalla nuklidilla samassa väliaineessa ja geometriassa kuin mitattava näyte [1, 2].

Kalibrointilähteen mittaamiseen tarvitaan riittävästi aikaa, jotta tulosten tilastollinen epävarmuus saadaan riittävän pieneksi. Mittausaikaa voidaan lyhentää asettamalla lähde kontaktiin ilmaisimen kanssa. Tämä lisää fotonien summutumista, eli kahden tai useamman fotonin rekisteröitymistä ilmaisimessa samanaikaisesti. Summutuminen pitää ottaa huomioon korjaustermillä. Näiden korjaustermien määrittämiseen liittyy epävarmuutta, mikä kasvattaa nuklidille lasketun aktiivisuuden kokonaisepävarmuutta. Näytteen sijoittaminen kauemmas ilmaisimesta vähentää summutumista, mutta suurilla etäisyyksillä lähteeltä vaaditaan suurempaa aktiivisuutta mittausajan lyhentämiseksi. Aktiivisten lähteiden varastoiminen vie puolestaan säilytystilaa, joten kokeellisten kalibrointien toteuttaminen ja ylläpitäminen kaikille mitattaville näytteille on työlästä.

STUKissa mitataan kymmeniä eri näytetyyppejä, joiden geometriat ja koostumukset vaihtelevat. Näytteen ominaisuuksilla on vaikutusta fotonien piikkitehokkuuteen, joten kaikille näytetyypeille tarvitaan oma tehokkuuskalibrointi. Ajan ja resurssien säästämiseksi tehokkuuskalibrointien tekemiseen on kehitetty laskennallisia menetelmiä.

Efficiency transfer –menetelmässä (ET) analysoitavan näytteen piikkitehokkuuskäyrä johdetaan kokeellisesti määritetystä standardilähteen piikkitehokkuuskäyrästä [3]. Menetelmä toimii tietyin rajoituksin useille näyttemateriaaleille ja mittausgeometrioille.

EFFTRAN on fyysikko Tim Vidmarin kehittämä ohjelma gammaspektrometrisen piikkitehokkuuskäyrän laskemiseen ET-menetelmällä [4]. Ohjelma suorittaa kalibrointisiirron, eli muuntaa standardilähteen piikkitehokkuuskäyrän sopivaksi mitattavalle näytteelle, jonka kemiallinen koostumus ja geometria poikkeavat standardilähteestä. Ohjelma laskee näytteelle piikkitehokkuuskäyrän sitä paremmin, mitä enemmän näytteen ja standardilähteen geometriat vastaavat toisiaan [4].

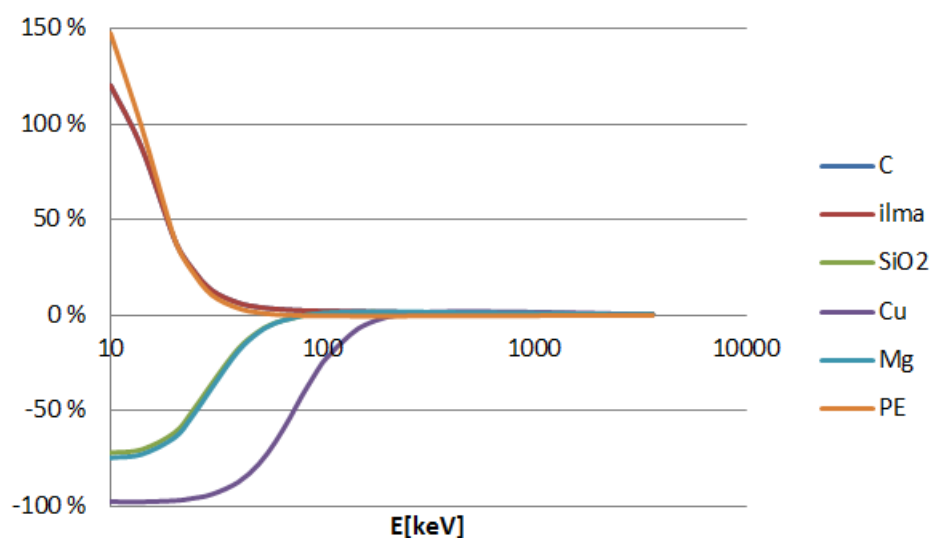
EFFTRAN ottaa kalibrointisiirrossa huomioon näytteen alkuainekoostumuksen, joka vaikuttaa fotonien havaitsemistehokkuuteen alle 100 keV:in energioilla [5]. STUKissa käytettävien gammaspektrometrien energia-alue kattaa välillä 14-1836 keV. Yli 100 keV:in energioilla alkuainekoostumus ei vaikuta olennaisesti piikkitehokkuuteen (Kuva 1), koska kyseisillä energioilla vallitsevien vuorovaikutusten (Comptonin ilmiön ja parinmuodostuksen) todennäköisyydet riippuvat käytännössä kokonaan fotonin energiasta ja väliaineen tiheydestä.

Pienienergisten fotonien (10 keV - 100 keV) analysointi tuottaa STUKin nykyisillä menetelmillä epätarkkoja tuloksia [6]. Ne poikkeavat suurimmillaan yli 10 % nuklidien todellisista aktiivisuuksista. STUKin käytössä oleva analyysiohjelma UniSAMPO-Shaman (USS) ottaa piikkitehokkuuden laskemisessa huomioon ainoastaan näytteen tiheyden ja mittauspurkin täyttöasteen. Koska EFFTRAN ottaa huomioon myös näytteen alkuainekoostumuksen, sen odotetaan antavan parempia tuloksia pienienergisten fotonien tapauksessa.

Näytteen tiheys ja mittausgeometria vaikuttavat fotonien havaitsemistehokkuuteen koko energia-alueella, jota STUKin gammaspektrometreillä mitataan. Kalibrointisiirrossa näytteelle suoritetaan korkeus-tiheyskorjaus, jolla otetaan huomioon näytteen ominaisuuksien poikkeaminen standardilähteestä. Tätä tarvitaan laskettaessa tehokkuuskäyrää näytteelle, jolla on eri geometria tai koostumus kuin standardilähteellä.

Tässä työssä selvitetään EFFTRANin käyttökelpoisuutta gammaspektrometriaan suorittamalla aiemmin tehtyjä USS-analyyssejä uudelleen. Analyysiohjelmana käytetään edelleen UniSAMPO-Shamania, mutta lähtökaliibroinit muunnetaan EFFTRANin avulla kullekin näytteelle sopivaksi. Ensimmäinen tavoite on osoittaa, että näin saadaan yhteneviä tuloksia nykyisen laskentamenetelmän kanssa. Sen jälkeen kalibrointisiirtojen avulla laskettuja aktiivisuuspitoisuuksia verrataan tunnettuihin referenssilähteiden aktiivisuuspitoisuuksiin. Viimeisessä vaiheessa tarkastellaan alkuainekoostumuksen vaikutusta USS-analyysien tuloksiin.

Jokaiselle mittausgeometrialle on olemassa oma lähtökaliibraatio, jota käytetään tehokkuuskäyrän määrittämiseen. STUKin gammalaboratoriossa on



Kuva 1: Piikkitehokkuuksien poikkeamat veden piikkitehokkuudesta eri materiaaleilla, kun kaikkien materiaalien tiheydeksi on asetettu 1 (C = hiili, SiO₂ = piidioksidi, Cu = kupari, Mg = magnesium, PE = polyeteeni). Kuten kuvasta nähdään, alkuainekoostumuksella on ratkaiseva merkitys piikkitehokkuuteen energioilla 10-100 keV, mutta yli 100 keV:in energioilla piikkitehokkuudet (ϵ_p) ovat käytännössä väliaineesta riippumattomia. Joillakin materiaaleilla (kuvassa Cu) alkuainekoostumus voi kuitenkin vaikuttaa piikkitehokkuuteen myös 100 keV:iä korkeammilla energioilla.

käytössä viisi erimuotoista mittausastiaa ja 15 ilmaisinta. Osalle mittausastioista on laadittu peruskalibrointeja useille eri täyttöasteille, joten peruskalibrointeja kaikille mahdollisille mittausasetelmille on yli 100. Tämän työn tulosten perusteella on tarkoitus arvioida, pystyttäisiinkö EFFTRANin avulla johtamaan tehokkuuskäyrät jokaiselle STUKissa käytettävälle mittausgeometrialle käyttäen ainoastaan yhtä tai kahta kokeellisesti määritettyä lähtökalirointia.

2 Teoria

2.1 Vuorovaikutukset

Ionisoiva sähkömagneettinen säteily jaetaan röntgen- ja gammasäteilyyn. Röntgensäteilyä (100 eV-100 keV) syntyy atomin viritystilojen muutoksista. Gammasäteily on peräisin atomiytimien viritystilojen purkauksista, ja sen energia ulottuu muutamasta keV:ista aina 10 MeV:iin asti. Ionisoivan säteilyn vuorovaikutus väliaineen kanssa tuottaa sekundaarihiukkasia, jotka ionisoivat väliainetta. Fotonit ovat massattomia energiakvantteja, joista röntgen- ja

gamma-säteily koostuvat. Fotoni voi olla vuorovaikutuksessa sähkömagneettisen kentän tai ydinvoimakentän kanssa parinmuodostuksen, absorption, sekä elastisen ja epäelastisen sironnan kautta.

Valosähköisessä ilmiössä fotoni vuorovaikuttaa atomin kanssa ja luovuttaa koko energiansa atomin elektronille. Vuorovaikutuksen seurauksena elektroni irtoaa atomista ja saa liike-energiakseen

$$E_e = E_\gamma - E_b. \quad (1)$$

missä E_γ on fotonin energia ja E_b elektronin sidosenergia [7]. Elektronin jättämä aukko täyttyy ylempään kuoreen elektronilla, jolloin vapautuu karakteristista röntgensäteilyä tai augerelektroneja.

Comptonin ilmiössä fotoni siroaa atomiin sitoutuneesta elektronista. Fotonin vuorovaikutuksessa menettämä energia siirtyy elektronin liike-energiaksi. Energianmenetys riippuu sirontakulmasta ja fotonin alkuperäisestä energiasta. Atomista irtoavan elektronin energia absorboituu väliaineessa.

Kun fotonin energia ylittää energian $2mc^2 = 1,022\text{MeV}$, se voi synnyttää elektroni-positroniparin osuessaan atomiytimen sähkökenttään. Syntyvän e^-e^+ -parin liike-energiaksi jää $E_{pair} = E_\gamma - 1,022\text{MeV}$. Parinmuodostuksessa syntyvät positronit vuorovaikuttavat elektronien kanssa. Tässä anihilaatioksi kutsutussa vuorovaikutuksessa elektroni ja positroni muuttuvat kahdeksi 0,511 MeVin gammafotoniksi, jotka lähtevät likimain vastakkaisiin suuntiin liikemäärän säilymislain mukaisesti [2].

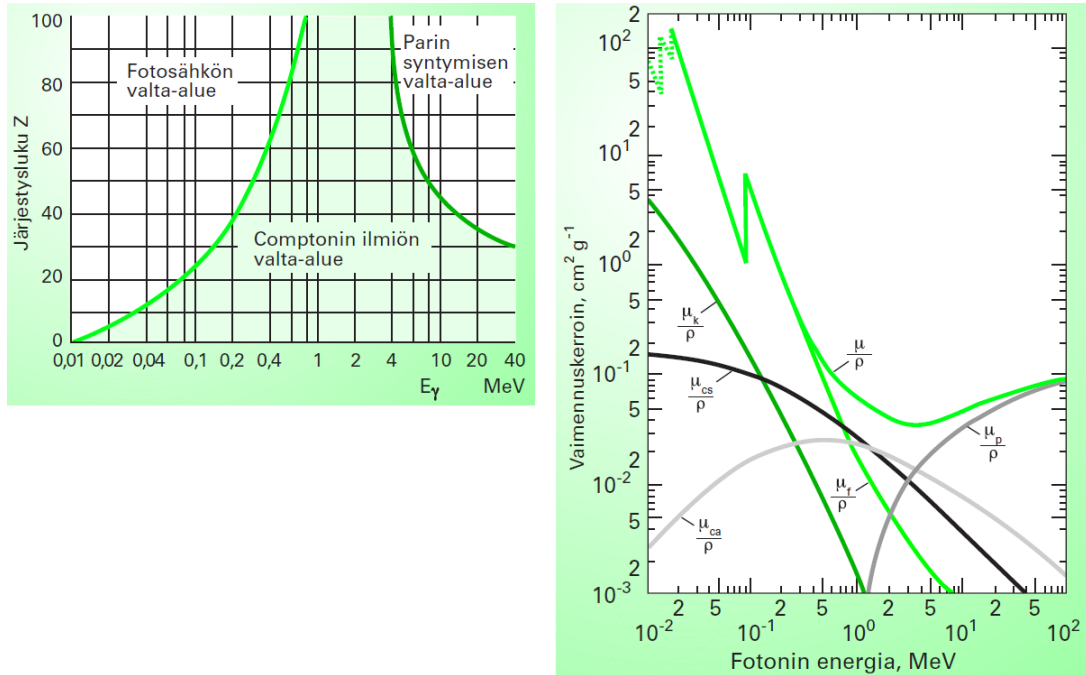
2.2 Vaimennuskerroin

Gammasäteily vaimenee vuorovaikuttaessaan väliaineen elektronien tai atomiytimien kanssa. Kokonaisvaimennusta kuvataan kaavalla

$$I = I_0 e^{-\mu x}, \quad (2)$$

missä x on fotonin kulkema matka ja μ matkavaimennuskerroin. Näistä jälkimmäinen termi ilmaistaan kaikkien eri vuorovaikutuksen vaimennuskertoimien summana

$$\mu = \mu_{photo} + \mu_{compton} + \mu_{pair}, \quad (3)$$

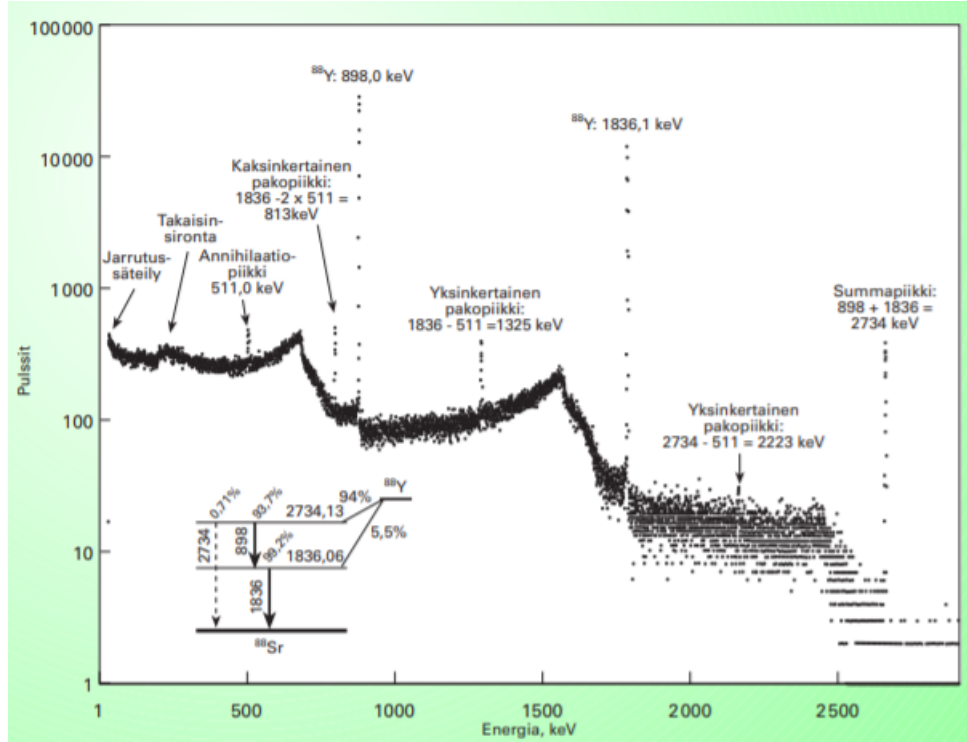


Kuva 2: Oikeanpuoleisessa kuvaajassa on massavaimennuskertoimia eri vuorovaikutuksille (k: koherentti sironta, f: valosähköinen ilmiö, CS: Comptonin sironta, CA: Comptonin absorptio, p: parinmuodostus) lyijyn ja gammasäteilyn välillä. Termi (μ) viittaa vaimennuskertoimien summaan yhtälön (3) mukaisesti. Vasemmanpuoleisessa kuvaajassa näkyy vallitsevat vuorovaikutustavat energian ja väliaineen järjestysluvun funktiona. Valosähköinen ilmiö on yleisin noin 0-200 keV:in energioilla. Tätä suuremmilla energioilla Comptonin ilmiö on vallitseva. Parinmuodostusta tapahtuu fotonin energian ollessa vähintään 1,022 MeV [2]. Kuvan oikeudenomistaja: Säteilyturvakeskus.

missä μ_{photo} , $\mu_{compton}$ ja μ_{pair} ovat todennäköisyydet valosähköiselle ilmiölle, Comptonin sironnalle ja parinmuodostukselle.

Matkavaimennuskertoimen μ suuruus riippuu gammakvantin energiasta ja väliaineen tiheydestä, sekä pienien energioiden fotoneilla myös väliaineen alkuainekoostumuksesta (Kuvat 1 ja 2). Vaimennuskertoimet pienillä energioilla vaihtelevat siis väliaineittain, vaikka niiden tiheydet olisivat samat. Tämä selittyy valosähköisellä ilmiöllä, joka on fotonien pääasiallinen vuorovaikutustapa alle 100 keV:in energioilla. Fotoelektronin energia E_e riippuu E_γ :n lisäksi elektronin sidosenergiasta E_b , joka puolestaan määräytyy väliaineen järjestysluvusta.

Valosähköisestä ilmiöstä aiheutuva vaimennuskertoimen μ_{photo} saadaan mikroskooppisesta vaikutusalueesta τ ja väliaineen atomien lukumäärästä tilavuusyksikköä kohden. Vaimennuskertoimen μ_{photo} lasketaan kaavalla



Kuva 3: Germaniumilmaisimella mitattu ^{88}Y -lähteen gammaspektri ja ^{88}Y :n yksinkertaistettu hajoamiskaavio. Kuvassa näkyy ^{88}Y :n kokonaisabsorptiopiikit (898 keV, 1836,1 keV ja 2734 keV), vastaavat Compton reunat (noin 700 keV, 1600 keV ja 2550 keV) ja annihilaatiopiikki (511 keV), sekä yksinkertainen (1352 keV) ja kaksinkertainen pakopiikki (813 keV) [2]. Kuvan oikeudenomistaja: Säteilyturvakeskus.

$$\mu_{photo} = \frac{\tau \rho N_A}{A_{mass}}, \quad (4)$$

missä N_A on Avogadron vakio ja ρ ja A_{mass} ovat absorboivan materiaalin tiheys ja keskimääräinen massaluku. Valosähköisen ilmiön mikroskooppinen vaikutusala [7]

$$\tau = vakio \cdot \frac{Z^n}{E_\gamma^{3,5}}, \quad (5)$$

on suoraan verrannollinen atomiluvun potenssiin n , joka väliaineesta riippuen vaihtelee välillä 4-5. Kun fotonin energia E_γ ylittää arvon 100 keV, pienenee τ lähes nollaan, koska termi $E_\gamma^{3,5}$ kasvaa voimakkaasti energian funktiona.

Valosähköisessä ilmiössä fotonit absorboituu kokonaan väliaineeseen. Kuitenkin lähellä ilmaisimen pintaa on mahdollista, että jotkin fluoresenssirönt-

gensäteet, erityisesti K-röntgensäteet, poistuvat mittaussysteemistä. Näistä aiheutuvia piikkejä gammaspektrissä (Kuva 3) kutsutaan pakopiikeiksi.

Fotonin energian kasvaessa E_b :n merkitys pienenee suhteessa fotoelektronin energiaan. Comptonin siirron ja parinmuodostuksen vaikutusalat riippuvat heikommin väliaineen alkuainekoostumuksesta kuin valosähköisen ilmiön vaikutusala, joten yli 100 keV:in energioilla fotonien vaimeneminen riippuu käytännössä fotonin energiasta ja väliaineen tiheydestä.

Compton-siirron vaikutusala on riippuvainen materiaalin elektronitiheydestä ja fotonin energiasta. Compton-siirron jättä jää ilmaisimelle energia

$$E_e = E_\gamma - E'_\gamma \quad (6)$$

$$E_e = E_\gamma \frac{(\frac{E_\gamma}{m_e c^2})(1 - \cos(\theta))}{1 + (\frac{E_\gamma}{m_e c^2})(1 - \cos(\theta))}, \quad (7)$$

missä θ on siirontakulma ja E_γ ja E'_γ ovat tulevan ja siirron fotonin energiat.

Parinmuodostus vaatii fotonilta vähintään energian 1,022 MeV, mikä vastaa syntyvän elektroni-positroniparin lepomassaa. Parinmuodostuksen vaikutusala

$$\kappa \propto Z^2 f(E_\gamma, Z) \quad (8)$$

riippuu väliaineen järjestysluvun Z neliöstä.

2.3 Piikki- ja kokonaistehokkuus

Piikkitehokkuus kuvaa, miten suuri osa ilmaisimeen osuvista fotoneista absorboituu ja rekisteröityy niiden energiaa E vastaavaan fotopiikkiin. Piikkitehokkuus määritetään yhtälöstä

$$\epsilon_p(E) = \frac{N_p}{R}, \quad (9)$$

missä N_p on energiaa E vastaavan fotopiikin ala (pulssimäärä) ja R lähteen samassa ajassa emittoimien fotonien (energia E) lukumäärä [1, 2]. Jotta fotoni tulisi rekisteröidyksi kyseiseen fotopiikkiin, on sen luovutettava koko energiansa ilmaisimen aktiiviseen alueeseen, kiteeseen. Piikkitehokkuus riippuu fotonin energiasta ja mittausgeometriasta yhtälön

$$\epsilon_p = \epsilon_G \epsilon_l \quad (10)$$

mukaan. Tässä ϵ_G on geometrinen tehokkuus, joka kuvaa niiden fotonien osuutta, jotka osuvat kiteeseen [8]. Geometrinen tehokkuus määräytyy näytteen ja ilmaisimen geometriasta, sekä näytteen sijainnista ilmaisimeen nähden. Termi ϵ_l kuvaa pulssimäärän suhdetta ilmaisimeen osuvien fotonien lukumäärään. Tehokkuutta ϵ_l ei voida yksiselitteisesti määrittää, sillä se riippuu useista eri tekijöistä, kuten fotonin energiasta, absorptiosta ja ilmaisimen ominaisuuksista. Pistelähteen geometrinen tehokkuus annetaan muodossa

$$\epsilon_G = \frac{\Omega}{4\pi}, \quad (11)$$

missä Ω on näytteen ja ilmaisimen välinen avaruuskulma.

Kokonaistehokkuudella ϵ_t kuvataan todennäköisyyttä sille, että lähteen emittoima fotoni tulee ylipäättään rekisteröidyksi. Energiaa E vastaava kokonaistehokkuus saadaan yhtälöstä

$$\epsilon_t(E) = \frac{N_t}{R}, \quad (12)$$

missä N_t on rekisteröityjen pulssien kokonaismäärä. N_t pitää sisällään myös ne fotonit, jotka vuorovaikuttavat kiteen kanssa, mutta eivät luovuta sille koko energiaansa. Tällaisessa tapauksessa fotoni ei rekisteröidy sen energiaa vastaavaan fotopiikkiin.

Fotopiikin ala on verrannollinen näytteen emittoimien fotonien lukumäärään. Piikin ala saadaan yhtälöstä

$$N_p(E) = N_\gamma(E) \epsilon_p(E) = A \cdot I(E) \cdot t \cdot \epsilon_p, \quad (13)$$

missä $N_\gamma(E)$ on emittoitujen fotonien lukumäärä energialla E , A kyseisen radionuklidin aktiivisuus, $I(E)$ vastaavan gammaemission intensiteetti, t mitausaika ja ϵ_p ilmaisimen piikkitehokkuus [2]. Merkitsemällä jokainen spektrin piikki indeksillä i , voidaan yllä oleva yhtälö kirjoittaa muotoon

$$n_i = A \cdot I_i \cdot \epsilon_i, \quad (14)$$

missä $n_i = \frac{N_p(E)}{t}$ on fotopiikin laskentataajuus. Tästä saadaan laskettua nuklidin aktiivisuus

$$A = \frac{n_i}{I_i \cdot \epsilon_i}, \quad (15)$$

Jos tarkasteltava nuklidi emittoi gammafotoneja useilla eri energioilla, aktiivisuuden laskemisessa on otettava huomioon kaikkien piikkien alat ja emissiotodennäköisyydet, jotka ovat peräisin kyseisestä nuklidista.

2.4 Koinsidenssisummutuminen

Säteilyn havaitseminen puolijohdeilmaisimella perustuu ilmaisimen ja fotonien vuorovaikutuksista syntyvien elektroni-aukkoparien keräämiseen. Tähän kuuluu tietty aika, jota kutsutaan ilmaisimen erotusajaksi. Gammaspektrometrien erotusaika on tyypillisesti mikrosekuntien luokkaa. Ytimien viritystilojen eliniät vaihtelevat useasta päivästä muutamaan pikosekuntiin. Jos viritystila on lyhyempi kuin ilmaisimen erotusaika, kaksi (tai useampi) fotonia voi osua erotusajan sisällä ilmaisimen aktiiviseen alueeseen [9]. Tällöin ilmaisin ei pysty erottamaan pulsseja toisistaan, vaan se laskee niiden energiat yhteen ja muodostaa summapulssin johonkin osaan spektriä. Tätä tapahtumaa kutsutaan koinsidenssisummutumiseksi.

Koinsidenssisummutumista on kahta lajia: todellinen koinsidenssisummutuminen (TCS, True Coincidence Summing) ja satunnaissummutuminen (RS, Random summing). Satunnaissummutumisessa kaksi tai useampi eri ytimen emittoimaa fotonia rekisteröidään samanaikaisesti. Nämä fotonit voivat tulla näytteestä, mutta myös ympäristön taustasäteily voi aiheuttaa satunnaissummutumista. Näytteen emittoimat fotonit voivat myös virittää lyijysuojan materiaalia. Viritystilan purkautuessa emittoituu röntgenkvantteja, jotka voivat summutua näytteistä lähtevien fotonien kanssa.

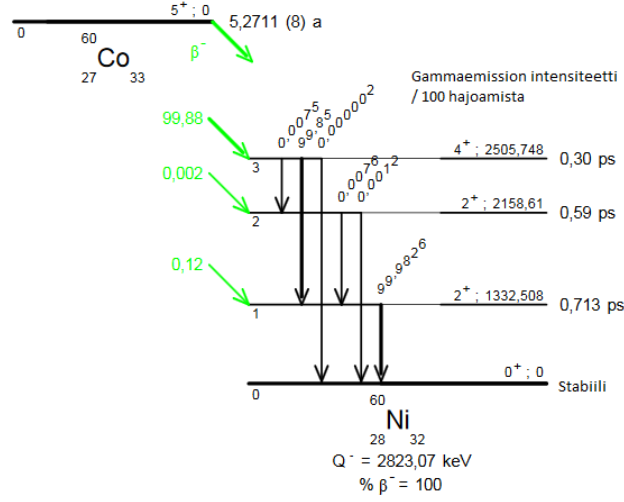
Todellisessa koinvidenssisummautumisessa (jatkossa summautuminen) kaksi tai useampi saman ytimen emittoimaa fotonia rekisteröidään ilmaisimen erotusaikana. Summautuminen muuttaa fotopiikin pulssitaajuutta, koska summautunut pulssi ei tallennu sen energiaa vastaavaan fotopiikkiin. Fotonien suunnat eivät aina riipu toisistaan [1]. Spektriin syntyy summapiikki, kun samassa hajoamisessa emittoituneet nuklidit havaitaan ilmaisimen erotusaikana ja molemmat kvantit luovuttavat ilmaisimelle koko energiansa. Jos toinen tai molemmat fotonit luovuttavat vain osan energiastaan, pulssi rekisteröityy johonkin kohtaan spektriä aina summapiikin energiaan asti. Todellista koinvidenssisummautumista ei tapahdu monoenergisillä nuklideilla.

Summautumisen vaikutukset huomioidaan c_{TCS} -korjauskertoimella (tai TCS), joka ilmaistaan rekisteröityjen fotonien ja näytteen emittoimien fotonien välisenä suhteena. Mitä enemmän fotoneja rekisteröidään suhteessa nuklidin pulssitaajuuteen, sitä suurempi on summautumien fotonien osuus rekisteröityihin fotoneihin verrattuna. Nuklidin aktiivisuus ei siten vaikuta c_{TCS} -korjauskertoimeen.

TCS-korjauskertoimet voidaan määrittää kokeellisesti vertaamalla laskentataajuuksia näytteen ollessa lähellä ja kaukana kiteestä. Fotonien summautumista tapahtuu eniten, kun näyte on kosketuksessa kiteen kanssa. Etäisyyden kasvattaminen vähentää kiteeseen osuvien fotonien lukumäärää. Tällöin myös summautuminen vähenee ja mitatut fotopiikkien pulssitaajuudet lähestyvät nuklidin todellista pulssitaajuutta.

Useimmissa tapauksissa summautuminen vähentää fotopiikin pulssien määrää (summing-out). Tämä huomioidaan aktiivisuutta laskettaessa ykköstä suuremmalla c_{TCS} -korjauskertoimella, koska tällöin fotopiikin energiaa vastaavia fotoneja syntyy todellisuudessa enemmän kuin mitä ilmaisimen rekisteröi. Joissain tapauksissa summautuminen voi myös kasvattaa fotopiikkiä (summing-in). Tämä täytyy huomioida c_{TCS} -kertoimella, joka sijoittuu välille [0,1]. Summing-in on mahdollista nuklideilla, joilla on useita energiatasoja. Kun summautumista ei tapahdu, c_{TCS} -kerroin saa arvon 1.

TCS-korjauskertoimien laskeminen pistemäiselle ^{60}Co -lähteelle on eräs yksinkertaisimmista tapauksista kyseisten kertoimien määrittämiseen. ^{60}Co hajoaa β -hajoamisella ^{60}Ni :ksi (Kuva 4). Tytärnuklidi ^{60}Ni on aluksi 99,88 %:n todennäköisyydellä energiatasolla 2505,9 keV. Tämä viritystila purkautuu käytännössä tilojen 1332,5 keV ja 1173,2 keV kautta perustilaan. Siten lähes kaikki ^{60}Co :n hajoamiset tuottavat kaksi gammakvanttia, joiden energiat ovat 1173,2 keV ja 1332,5 keV. Molempien edellä mainittujen tilojen eliniät ovat pikosekuntien luokkaa.



Kuva 4: ^{60}Co :n hajoamiskaavio. ^{60}Co hajoaa β^- -hajoamisella ^{60}Ni :ksi, joka on aluksi virittyneessä tilassa (2505,748 keV). Tämä viritystila purkautuu tilan 1332,5 keV kautta perustilaan yli 99 %:n todennäköisyydellä [10]. Kuvan oikeudenomistaja: ureau International des Poids et Mesures.

Viritystilan 2505,9 keV emissiotodennäköisyys on vain 0,00005 %. Energia 2505,9 keV saadaan yhteenlaskemalla energiat 1173,2 keV ja 1332,5 keV, jotka ovat ^{60}Co :n pääpiikit. Lähes kaikki mitatut 2505,9 keV:in pulssit ovat siis summapiikkejä 1173,2 keV:in ja 1332,5 keV:in fotoneista, joiden tuotto on yli 99 %. 2505,9 keV:in gammafotonin c_{TCS} on siten käytännössä nolla.

Todellisen koinvidenssisummautumisen laskemiseen tarvitaan tiedot ilmaisimen piikki- ja kokonaistehokkuuksista, jotka voidaan määrittää sekä kokeellisesti että laskennallisesti. ^{60}Co -pistelähteelle c_{TCS} -korjauskertoimet ovat

$$c_{TCS} = \frac{\epsilon_1}{p_{FEP}} = \frac{1}{1 - \eta_2}, \quad (16)$$

missä indeksi 1 viittaa 1173,2 keV:in fotoniin ja indeksi 2 fotoniin 1332,5 keV [11]. Tekijä p_{FEP} on todennäköisyys sille, että 1173,2 keV:in gammakvantti osuu kyseistä energiaa vastaavaan fotopiikkiin. Sama yhtälö pätee myös, kun indeksit vaihdetaan keskenään.

Jos nuklidilla on useita gammaenergioita, sen hajoamiskaavio monimutkaisuutuu ja c_{TCS} -korjauskertoimien laskeminen hankaloituu. Siten c_{TCS} -kertoimien määrittäminen useille nuklideille on mahdollista ainoastaan laskennallisin menetelmin. Yleisessä gammasiirtymässä $i \rightarrow k$ c_{TCS} -korjaustermit saadaan osamäärästä

$$c_{TCS,ik} = \frac{R_{ik}^*}{R_{ik}}, \quad (17)$$

missä R_{ik} on laskentataajuus ilman summautumista ja mitattu R_{ik}^* laskentataajuus [12]. Laskentataajuudet voidaan jakaa tekijöihin

$$R_{ik}^* = L_i a_{ik} \quad (18)$$

$$R_{ik} = N_i A_{ik} M_k, \quad (19)$$

ja näiden yhtälöiden tekijät merkitään:

$$L_i = N_i^* + \sum_{n=i+1}^m L_n x_{ni}, \quad (20)$$

$$a_{ik} = \frac{x_{ik} \epsilon_{p,ik}}{1 + \alpha_{ik}} \quad (21)$$

$$A_{ik} = a_{ik} + \sum_{k+1}^{i-1} a_{ij} A_{jk} \quad (22)$$

$$M_k = \sum_{j=0}^{k-1} b_{jk} M_j, M_0 = 0 \quad (23)$$

$$N_i = N_i^* + \sum_{n=i+1}^m N_n b_{ni} \quad (24)$$

$$b_{ik} = x_{ik} \left(1 - \frac{\epsilon_{t,ik}}{1 + \alpha_{ik}}\right), \quad (25)$$

missä

N_i^* on suorien siirtymien prosenttiosuus energiatasolle i , m on korkein energiataso,

X_{ik} on siirtymien $i \rightarrow k$ prosenttiosuus (sisältää sekä gammaemissiot että sisäiset siirtymät),

$\epsilon_{p,ik}$ on siirtymän $i \rightarrow k$ energian piikkitehokkuus,

$\epsilon_{t,ik}$ on siirtymän $i \rightarrow k$ energian kokonaistehokkuus,

α_{ik} on kokonaissiirtymän kerroin siirtymälle $i \rightarrow k$

Summautumista tapahtuu toisinaan myös muiden kuin gammasiirtymistä aiheutuvien primääristen fotonien kanssa. Näihin kuuluvat esimerkiksi Comptonin ilmiöissä sironneet fotonit sekä röntgen- ja annihilaatiokvantit. Edellä mainittuja fotoneja syntyy sekä näytteen sisällä että primäärifotonin osuessa ilmaisimen suojamateriaaliin.

Suojamateriaalin lyijyatomit voivat virittyä gammasäteilyn osuessa niihin. Viritystilojen purkautumisesta syntyy röntgensäteilyä, jonka aiheuttamat fotopiikit näkyvät spektrissä. STUKin gammaspektrometrien suojuksina käytetään lyijyä, jonka yleisiä röntgenenergioita ovat 73 keV, 75 keV ja 85 keV. Röntgensäteilyä syntyy myös radionuklidin sisäisissä siirtymissä, kuten elektronisieppauksessa. Vastaavasti Comptonin ilmiötä voi tapahtua sekä näytteessä suojamateriaalissa. Mikäli näytteen ja kiteen välinen etäisyys poikkeaa nolasta, osa gammasäteilystä absorboituu myös ilmaan tai suuntautuu kiteen ohi. Kaikki edellä mainitut tapaukset vähentävät fotopiikin pulssitaajuutta.

2.5 Korjaustermit

Näytteen aktiivisuuspitoisuuden määrittäminen vaatii useita korjauskertoimia, joilla huomioidaan fotonien havaitsemistehokkuuteen vaikuttavat tekijät. Aktiivisuuspitoisuus C_A ilmaistaan kaavalla

$$C_A = \frac{R}{\epsilon \cdot I_\gamma \cdot m} \cdot c_i(c_{coll}, c_{decay}, c_x, c_{TCS}, c_{RS}) \quad (26)$$

missä R on energian E_γ laskentataajuus, ϵ ilmaisimen tehokkuus energialle E_γ , I_γ gammaenergian intensiteetti, m näytteen massa ja c_i korjauskertoimet hajoamisajalle (c_{coll}), hajoamiselle laskenta-aikana (c_{decay}), itseabsorptiolle

(c_x) , todelliselle koinvidenssisummautumiselle (c_{TCS}) ja satunnaissummautumiselle (c_{RS}). Todellista laskentataajuutta merkitään $\frac{N_p}{t_p}$:lla, ja $\frac{N_p}{t_p}$ on taustasäteilyn laskentataajuus kyseiselle energialle [13, 14]. Ratkaistaessa tuntematonta aktiivisuutta nuklideille, joiden fotonilla on useita gammaenergioita, täytyy korjaamattomista piikeistä saadut aktiivisuudet kertoa sopivalla c_{TCS} -korjauskertoimella. Aktiivisuuspitoisuuden epävarmuus on

$$\Delta C_A = \sqrt{(\Delta R)^2 + (\Delta I_\gamma)^2 + (\Delta \epsilon)^2 + (\Delta m)^2} \quad (27)$$

missä ΔR , ΔP_γ , $\Delta \epsilon$ ja ΔM ovat epävarmuudet laskentataajuudelle, emission todennäköisyydelle, tehokkuudelle ja näytteen massalle [15]. Laskentataajuuden epävarmuus ΔR lasketaan bruttolaskentataajuuden (R_p) ja taustan laskentataajuuden (R_t) avulla:

$$\Delta R = \sqrt{\Delta R_b^2 + \Delta R_t^2} = \sqrt{\left(\frac{\sqrt{N_b}}{t_b}\right)^2 + \left(\frac{\sqrt{N_t}}{t_t}\right)^2} = \sqrt{\frac{N_b}{t_b^2} + \frac{N_t}{t_t^2}} \quad (28)$$

missä N_b on ajassa t_b mitattujen fotonien lukumäärä ja N_t niiden fotonien lukumäärä, jotka tulevat taustasta. Symbolilla t_t merkitään taustasäteilyn laskenta-aikaa.

2.6 Hukka-aika ja hajoaminen mittausaikana

Todellista mittausaikaa ei voida käyttää laskentataajuuden määrittämiseen, sillä se johtaa systemaattiseen virheeseen hukka-ajan t_d (dead time) vuoksi. Hukka-aika on mittaussysteemille ominainen suure, jonka aikana systeemi ei pysyty tallentamaan uutta tapahtumaa, eli tässä tapauksessa fotonin vuorovaikutusta kiteen kanssa. Datan tallennusaika t_{live} (live time) on mittausajan ja hukka-ajan erotus. Hukka-ajan korjaus kasvattaa nuklidille laskettavan aktiivisuuden kokonaisepävarmuutta.

Kun nuklidin aktiivisuus on mitattu referenssipäivänä, joka eroaa mittauksen ajankohdasta, nuklidin hajoaminen täytyy huomioida korjauskertoimella. Tämä lasketaan käyttämällä eksponentiaalisen hajoamisen kaavaa:

$$c_{decay} = \frac{A_0}{A_m} = \exp\left(\frac{\ln(2)(T_m - T_0)}{t_{\frac{1}{2}}}\right) \quad (29)$$

missä T_m on mittauksen aloitusaika, T_0 referenssipäivä, A_m aktiivisuus mittauksen aloitusaikana, A_0 aktiivisuus referenssipäivänä ja $t_{\frac{1}{2}}$ nuklidin puoliintumisaika. Jos nuklidilla on lyhyt puoliintumisaika, hajoaminen mittauksen aikana on huomioitava laskettaessa nuklidin aktiivisuutta näytteessä.

2.7 Itseabsorptio

Gammasäteilyn ja aineen vuorovaikutuksia tapahtuu myös näytteen sisällä. Tämä itseabsorptioksi kutsuttu ilmiö riippuu näytemateriaalin vaimennuskertoimesta ja mittausgeometriasta. Itseabsorptiota tapahtuu erityisesti pienillä energioilla (<100 keV). Sen vaikutusta tehokkuuden epävarmuuteen voidaan pienentää käyttämällä sellaista standardilähdettä ja näytettä, joiden koostumus ja geometria ovat mahdollisimman lähellä toisiaan. On kuitenkin tapauksia, joissa tällaisen asetelman toteuttaminen ei ole mahdollista. Tällöin aktiivisuuksien laskemiseen tarvitaan itseabsorption korjauskerrointa (c_x). Sen ratkaisemiseksi on kehitetty analyyttisiä ja laskennallisia kaavoja.

Itseabsorption korjauskerroin on verrannollinen väliaineen paksuuteen ja lineaariseen vaimennuskertoimeen [13, 14]. Usein matkavaimennuskertoimen tilalla käytetään massavaimennuskerrointa $\frac{\mu}{\rho}$, missä ρ on väliaineen tiheys. Vaimeneminen infinitesimaalisen paksuuden de läpi saadaan yhtälöstä

$$\frac{dI}{de} = \frac{I_0}{x} \exp(-\mu \cdot e) \quad (30)$$

Tässä I_0 on kerrokseen tulevien fotonien lukumäärä, I mitattujen fotonien lukumäärä, e de :n etäisyys näytteen pohjasta ja x näytteen paksuus. Integroimalla koko alueen yli saadaan

$$I = \int_0^x \frac{I_0}{x} \exp(-\mu \cdot e) de = I_0 \frac{1 - \exp(-\mu \cdot x)}{\mu \cdot x} \quad (31)$$

Yhtälöstä (2) voidaan johtaa vaimennuskertoimelle kaava

$$\mu = -\frac{1}{x} \ln\left(\frac{I}{I_0}\right) \quad (32)$$

Jos näytteen alkuainekoostumusta ei tunneta, sen matkavaimennuskerroin tulee määrittää kokeellisesti. Tarkan analyttisen ratkaisun etsiminen itseabsorptiolle on monimutkaista, joten tässä työssä tarkastellaan yksinkertaistettua mallia.

N. Cutshall esitti julkaisussaan [16] homogeenisten näytteiden matkavaimennuskertoimelle kaavan:

$$\mu = \frac{\mu_{air,0}}{x \cdot \ln\left(\frac{N_{p,air}}{N_{p,sam}}\right)} \quad (33)$$

missä x on näytteen paksuus, $N_{p,air}$ ja $N_{p,sam}$ ovat fotopiikkien alat referenssilähteelle ja mitattavalle näytteelle, joille on käytetty samaa purkkia. Vaimennuskertoimen μ ratkaisemiseksi eri energioille etsitään interpoloidut arvot kokeellisen datan polynomisovituksesta

$$u(E) = \sum_{i=0} (a_i \cdot E^i) \quad (34)$$

missä a_i on polynomin kerroin ja i polynomin asteluku, joka vastaa parasta korrelaatiota ($R^2 > 0,999$)

Itseabsorptiokerroin $F_{abs}(i)$ lasketaan näytteen korkeudesta seuraavasti:

$$F_{abs} = \frac{\frac{I}{I_0} - 1}{\ln\left(\frac{I}{I_0}\right)} = \frac{1 - \exp(-\mu_m \rho h)}{\mu_m \rho h} \quad (35)$$

missä ρ on näytteen tiheys ja μ_m näytteen massavaimennuskerroin. Jos referenssilähteen täyttökorkeus on pieni, siinä ei käytännössä tapahdu itseabsorptiota. Tällöin näytteen itseabsorptiokorjaus tulee muotoon [13]

$$c_x = \frac{1}{F_{abs}} = \frac{\mu_m x}{1 - \exp(-\mu_m x)} \quad (36)$$

Jos sekä näytteessä että referenssilähteessä tapahtuu itseabsorptiota, approksimaatio itseabsorption korjauskertoimelle c_x saadaan jakamalla standardilähteen ja näytteen itseabsorptiokertoimet:

$$c_x = \frac{F_{abs(sam)}^{-1}}{F_{abs(std)}^{-1}} = \left(\frac{1 - e^{-\mu_m \rho h}}{\mu_m \rho h} \right)_{sam} / \left(\frac{1 - e^{-\mu_m \rho h}}{\mu_m \rho h} \right)_{std} \quad (37)$$

Gammafotonin energiaa vastaava piikkitehokkuus ϵ_{sam} voidaan laskea mitattavan näytteen tapauksessa korjauskertoimen avulla, kun standardilähteen tehokkuus ϵ_{std} tunnetaan:

$$\epsilon_{sam} = \epsilon_{std} \cdot c_x \quad (38)$$

Näytteen korkeuden kasvattaminen lisää itseabsorptiota. Mitä pienempi on fotonin energia, sitä todennäköisemmin se absorboituu näytteen sisällä. Tämä heikentää fotonin havaitsemistehokkuutta ja kasvattaa tehokkuuden epävarmuutta. Lineaarinen vaimennuskerroin pienenee energian kasvaessa, koska tällöin fotonien vuorovaikutustiheys väliaineen kanssa pienenee. Tämä vähentää fotonien absorptiota näytteessä, mutta samalla suurempi osa fotoneista kulkeutuu ilmaisimen läpi vuorovaikuttamatta kiteen kanssa. Näin ollen fotonien havaitsemistehokkuus heikkenee myös suurilla energioilla. Germaniumilmaisimen tehokkuus on parhaimmillaan noin 100 keV:in energialla.

Jos näytteen etäisyys ilmaisimesta on suurempi kuin ilmaisimen suurin dimensio, voidaan lähde approksimoida pistemäiseksi. Kun näytteen ja ilmaisimen välinen etäisyys on suurempi kuin näytteen tai ilmaisimen suurin dimensio, c_x riippuu usein vahvasti näytemateriaalin matkavaimennuskertoimesta ja heikosti näytteen dimensioista.

3 Ohjelmistot ja menetelmät

3.1 Efficiency Transfer -menetelmä

Efficiency transfer (jatkossa ET) on menetelmä piikkitehokkuuksien muuntamiseen valitulle mittausgeometrialle. Piikkitehokkuus ilmaistaan kolmen eri vuorovaikutuksen tehokkuutena:

$$\epsilon_p = \epsilon_{p,photo} + \epsilon_{p,Compton} + \epsilon_{p,pair}, \quad (39)$$

missä $\epsilon_{p,photo}$, $\epsilon_{p,Compton}$ ja $\epsilon_{p,pair}$ ovat valosähköisen ilmiön, Comptonin sironnan ja parinmuodostuksen osuudet kokonaispiikkitehokkuudesta [17]. Näille vuorovaikutustavoille voidaan myös merkitä efektiiviset avaruuskulmat, joiden avulla saadaan piikkitehokkuudeksi:

$$\epsilon_p = \frac{1}{4\pi}(\Omega_{photo} + \Omega_{Compton}\kappa + \Omega_{pair}V) \quad (40)$$

Termit Ω_{photo} , $\Omega_{Compton}\kappa$ ja $\Omega_{pair}V$ ovat efektiivisiä avaruuskulmia. Ne kuvaavat todennäköisyyksiä sille, että gammafotoni vuorovaikuttaa ilmaisimen kanssa valosähköisellä ilmiöllä, Comptonin sironnalla tai parinmuodostuksella. Tekijöillä κ ja V otetaan huomioon, että vain osa Comptonin sironnasta ja parinmuodostuksesta kasvattavat piikkitehokkuutta.

Avaruuskulmien ja matkavaimennuskertoimien välillä on yhteys

$$\frac{\Omega}{\mu_{total}} = \frac{\Omega_{photo}}{\mu_{photo}} = \frac{\Omega_{Compton}}{\mu_{Compton}} = \frac{\Omega_{pair}}{\mu_{pair}}, \quad (41)$$

missä μ_{total} on ilmaisinmateriaalin matkavaimennuskerroin energialla E vuorovaikuttavalle fotonille [17]. Termit μ_{photo} , $\mu_{Compton}$ ja μ_{pair} ovat vastaavat vaimennuskertoimet valosähköiselle ilmiölle, Comptonin sironnalle ja parinmuodostukselle. Yhtälöstä (43) saadaan johdettua

$$\epsilon_p = \frac{\Omega}{4\pi} \left(\frac{\mu_{photo} + \mu_{Compton}\kappa + \mu_{pair}V}{\mu_{total}} \right) = \frac{\Omega}{4\pi} \frac{P}{T} = \frac{P}{T} \epsilon_t \quad (42)$$

Tässä $\frac{P}{T}$ on niin sanottu virtuaalinen piikki- ja kokonaistehokkuuksien suhde, joka huomioi ainoastaan ilmaisimen ja fotonien väliset vuorovaikutukset piikkitehokkuuden laskemisessa. $\frac{P}{T}$:n määrittämistä vaikeuttaa se, etteivät κ ja V ole tarkkaan tunnettuja. Niille voidaan kuitenkin etsiä approksimaatioita soveltuvien laskennallisten menetelmien.

Piikkitehokkuus voidaan seuraavien vaiheiden määrittää eri näytteille ja mitausgeometrioille [4, 17]:

1. Määritetään $(\epsilon_p E_\gamma)$ -käyrä kokeellisesti pistemäisellä kalibraatiolähteellä, jolla on suuri etäisyys ilmaisimeen. Tällä minimoidaan niiden fotonien summautuminen, jotka emittoituvat muista kuin monoenergisistä nuklideista.

2. Lasketaan efektiivinen avaruuskulma (Ω) tälle mittaasetelmalle ja kaikille tarvittaville etäisyyksille ja näytteen geometrioille.

3. Piikkitehokkuudet kaikille mittaageometrioille eri energioilla saadaan yhtälöstä $\epsilon_{p,x} = \epsilon_{p,ref}(\frac{\Omega_x}{\Omega_{ref}})$ [18]. Tässä $\frac{P}{T}$ -suhteen oletetaan pysyvän muuttumattomana. Todellisuudessa kyseinen tekijä voi vaihdella muutamia prosentteja.

ET-menetelmällä voidaan suorittaa tehokkuuskalibroinnin muunnos, jos ilmaisin on kalibroitu standardilähteellä, jonka geometria ei poikkea liikaa mitattavasta näytteestä. Tehokkuus mitattavalle näytteelle (ϵ_{sample}) saadaan standardilähteen tehokkuuksien (ϵ_{ref}) avulla yhtälön

$$\epsilon_{sample} = \epsilon_{ref} \frac{\eta}{\eta_{ref}}, \quad (43)$$

mukaan. Tässä η_{ref} ja η ovat virtuaaliset kokonaistehokkuudet standardille ja näytteelle.

3.2 EFFTRAN

EFFTRAN on gammaspektrometriin kalibroitisiirtoihin tarkoitettu ohjelma, joka laskee mitattavalle näytteelle piikkitehokkuuskäyrän standardilähteen piikkitehokkuuskäyrän avulla käyttäen Efficiency Transfer –menetelmää [19, 20]. EFFTRAN käyttää laskentamoduulina FORTRAN 77:lla tehtyä koodia. Ohjelma sisältää mallin ilmaisimesta ja lähteistä, joille käyttäjä antaa tarvittavat parametrit. EFFTRAN lukee laskuihin vaadittavat arvot txt-tiedostoista. Tässä työssä EFFTRANia käytetään Linux-käyttöjärjestelmässä gammasrv3-palvelimella. Ohjelmasta on olemassa myös versio, joka käyttää Exceliä käyttöliittymänä.

Näytemateriaalin alkuainekoostumus syötetään Composition.txt -tiedostoon. Excel-versiossa EFFTRAN-koodi kopioi XCOMista [19] tiedot fotonien vuorovaikutusten vaikutusaloista kyseiselle aineelle ja siirtää ne Materials-kansioon. Kun EFFTRANia käytetään Linuxissa, näytteelle tehdään Materials-kansioon oma txt-tiedosto, johon vaimennuskertoimet kopioidaan XCOMista käsin. Lähteen sisältämien nuklidien hajoamisdata tulee KORDATEN tietokannasta [20].

EFFTRAN laskee c_{TCS} -korjauskertoimet eri nuklideille ja geometrioille käyttäen siihen aiemmin laskemiaan piikki- ja kokonaistehokkuuksia. Tähän tar-

vittavat ilmaisimen ja näytteen tiedot ovat Coincidence Summing – hake-
mistossa. Ilmaisimen ominaisuuksia pääsee muuttamaan detector.txt – tie-
dostossa. EFFTRAN sisältää valmiita "materiaaleja", joista voidaan valita
koostumukset näytteille ja eri ilmaisimen osille.

EFFTRANia on testattu useilla eri kalibrointilähteillä, ja sen antamat
tulokset ovat yhdenmukaisia verrattuna Monte Carlo (MC) –pohjaiseen
GEANT4:ään [21], sekä useisiin muihin Efficiency Transfer –menetelmää
käyttäviin sovelluksiin [18]. EFFTRANia on myös käytetty kansainvälisessä
vertailussa eri koodeihin, joilla lasketaan c_{TCS} -korjauskertoimia.

EFFTRANin laskentatavalla on etuja MC-simulointeihin verrattuna. Ohjel-
ma laskee näytteiden ja standardilähteen tehokkuuksien suhteet ja kertoo
ne mitattujen kalibrointilähteen tehokkuuksien kanssa. MC -menetelmä pe-
rustuu aineen ja säteilyn vuorovaikutusten simulointiin. Kun simuloitavia
kvantteja on tuhansia ja niiden arvot vaihtelevat, systeemin ominaisuuksien
ratkaisemiseen kuluu paljon aikaa. Tehokkuuskäyrän laskeminen EFFTRA-
Nilla kestää noin 5-15 sekuntia, kun taas MC-simuloinneilla siihen voi mennä
yli tunti.

MC-simuloinneissa tarvitaan tarkat tiedot mittaussysteemin rakenteesta. Jos
ilmaisimen kaikkia dimensioita ei tunneta, simuloinnit saattavat antaa epä-
tarkkoja tuloksia. EFFTRANin laskennassa tulokset johdetaan tehokkuuk-
sien suhteista eri näytegeometrioiden välillä. Kun mittaukset ja kalibroi-
tisiirrot suoritetaan samalla ilmaisimella, mittaussysteemin dimensioita ja
geometrian muita tietoja ei tarvitse tuntea tarkasti, koska niiden vaikutuk-
set kumoavat toisensa laskennassa.

3.3 NAMIT

NAMIT on STUKissa kehitetty ohjelmisto tilausten, näytteiden, mittausten
ja mittaustulosten hallintaan [6]. Järjestelmä seuraa ja ohjaa näytteen kulkua
mittausprosessissa ja tallentaa näytteelle tehdyt toimenpiteet, niiden tulokset
ja seurantatiedot.

Myös gammaspektrometrejä ja mittauksia ohjataan NAMITin kautta. Mit-
tauksen päätyttyä järjestelmä tallentaa spektrin ja lähettää tulokset ja näy-
tetiedot UniSAMPO-Shamanin automaattianalyysiin. Analyysiputken tuot-
tamat tulokset tallentuvat automaattisesti LINSSI-tietokantaan [6]. Manu-
aalisen analyysin tulokset tallennetaan LINSSIin UniSAMPO-Shamanista.
Tuloksia voidaan tarkastella ja hyväksyä NAMITin käyttöliittymän kautta.

Ennen automaattianalyysin tulosten hyväksymistä NAMITissa tulee tarkas-
taa näytetiedot sekä spektrin ja analyysin laatu. Ensin katsotaan, että koh-

The screenshot shows the NAMIT system interface. The top navigation bar includes tabs: Nimit, Tilaukset, **Näytteet**, Määrittymiset, Raportointi, Laatu, and Ylläpito. Below this, there are sub-tabs: Näytteet, Lisää näyte, **Näytteen tiedot**, and Kokoomanäytteet.

The main area displays sample details for 'Näyte: 12426T'. The sample name is 'LO479-18'. The sample status is 'gammamittaus valmis, odottaa tulosten tarkistusta'. The sample type is 'Tilaus: LOMV Loviisan ympäristövalvonta'. The project is 'Projekti: LOMV(5550M-0)'. The sample was received on '25.10.18'. The reference date is '20.10.18 00:00'. The sample was taken from 'Määrälahti'. The sample type is 'ilma'. The sample was analyzed by 'kaasusuodatin'. The sample was analyzed by 'aktiivihilisuodatin'. The sample was analyzed by 'Täydellinen gamma'. The sample was analyzed by 'Täydellinen gamma'.

A pop-up window titled 'Purkitus' is open, showing sample data for 'Näyte: 12426T LO479-18'. The data includes:

- Geometria*: W-purkki
- Korkeus (mm): 11
- Kvantti*: 8400.0 m³
- Massa purkissa (g): taara, brutto, netto
- Tiheys: 0.8
- (Näytteen) Lisätietoja: (empty text area)
- ☐ Vakumointi

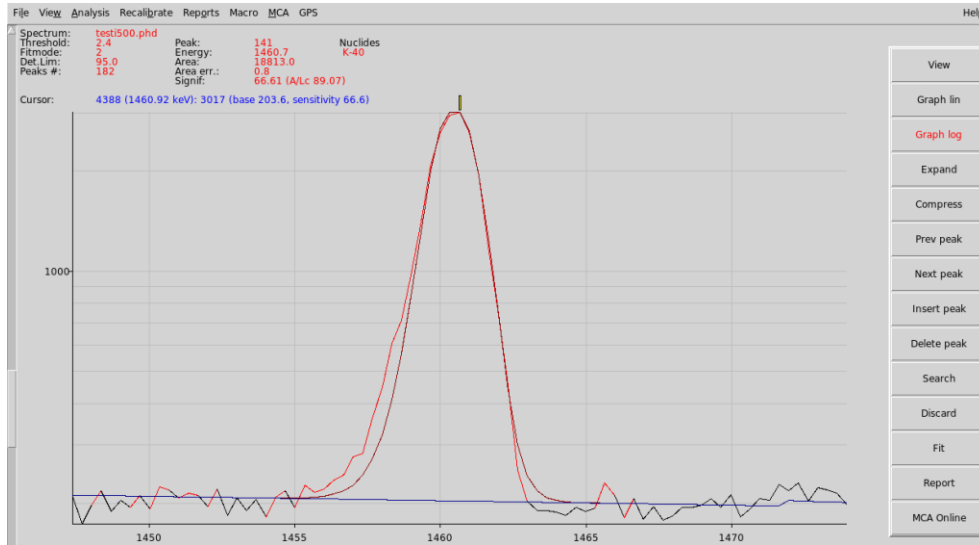
 The 'Korjaa' button is at the bottom.

Kuva 5: Näytteen tiedot NAMITissa

dat *Näyte*, *Purkki*, *Referenssipäivämäärä*, *Kvantti*, *Korkeus* (h) ja *Tiheys* (ρ) ovat kyseiselle näytetyypille ja geometrialle sopivia. Näytteen tiedot löytyvät NAMITin ylävalikon *Näytteet*-kohdan alta (Kuva 8). *Lisätiedot*-kohdasta katsotaan muita analyysiin vaikuttavia tietoja. Jos näytetietoihin (Kuva 8) tehdään muutoksia, spektri lähetetään NAMITissa uudelleen analyysiputkeen ennen tulosten tarkistusta.

Spektrin laadun tarkistamiseksi fotopiikkien ja taustapiikkien energiat tulee käydä läpi. Niiden perusteella nähdään, onko energiakalibrointia tarpeen korjata. Jos yhtään piikkiä ei olla tunnistettu taustapiikiksi ("BGDPK"), on syytä tarkastaa, että taustaspektri on vähennetty oikein mitatusta spektristä. Analyysin laadun tarkistamiseksi spektri-ikkunasta katsotaan, ettei sinne jää tunnistamattomia piikkejä ja että sovitettujen piikkien muodot vastaavat spektrin piikkien muotoja (Kuvat 9 ja 10). Manuaalista analyysiä tarvitaan, mikäli energia- tai muotokalibroinnissa on korjattavaa tai analyysissa on jäänyt piikkejä tunnistamatta.

Kun näytetiedot ja spektrin ja analyysin laatu on tarkistettu, voidaan tulokset hyväksyä. Tällöin tarkastellaan tunnistettujen nuklidien taulukkoa, jossa näkyvät aktiivisuudet, aktiivisuuksien epävarmuudet, havaitsemisraja ja käytetty puoliintumisaika. Tulosten on oltava suuruusluokaltaan järkeviä, ja niiden epävarmuuksien tulee olla riittävän pieniä (käytännössä alle 30 %).



Kuva 6: ^{40}K :n fotopiikki ja sen Gaussinen sovitus USS:n manuaalisessa analyysissä

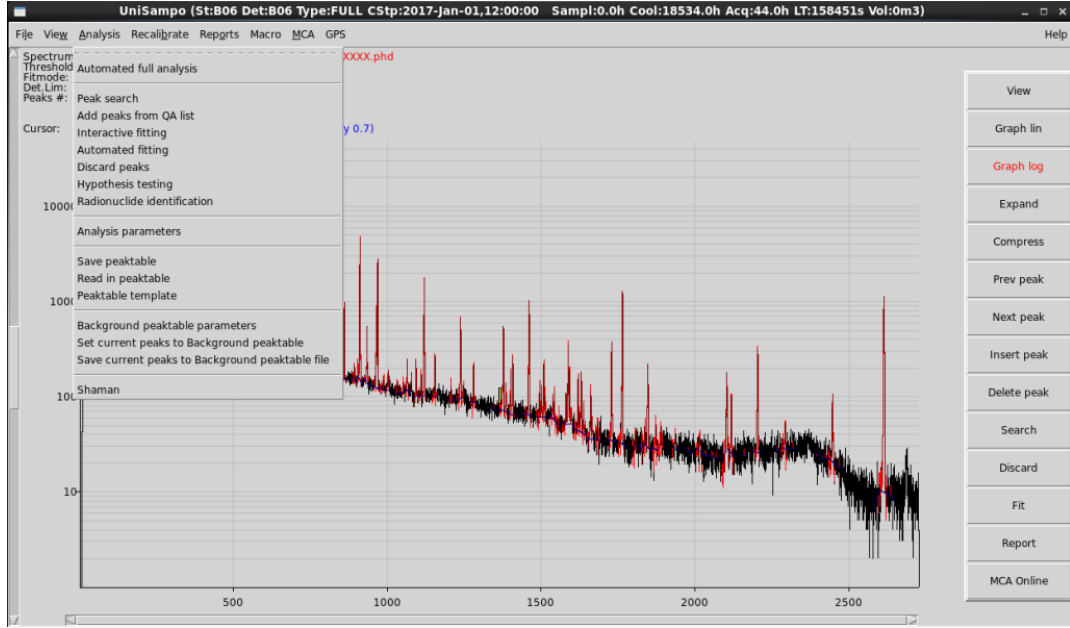
3.4 UniSAMPO-Shaman

UniSAMPO-Shaman-ohjelmistoa (USS) ympäristönäytteiden gammaspektrien analysoimiseen. Se on asennettu STUKissa gammasrv3-palvelimelle [6], jonka käyttöjärjestelmä on Linux. USS tekee mitattavalle näytteelle korkeus- tiheyskorjauksen ja laskee sitä kautta piikkitehokkuudet kyseiselle näytteelle [12]. USS laskee myös c_{TCS} -korjauskertoimet.

USS muodostuu kahdesta eri osa-ohjelmasta: UniSAMPOsta ja Shamanista. UniSAMPO sovittaa piikkeihin hännät, Gaussin funktion (Kuva 9) ja määrittää piikkien alat. Jos piikit ovat lähellä toisiaan, ne voidaan sovittaa samanaikaisesti.

UniSAMPO lukee input-tiedostoja eri formaateissa. Keskeinen formaatti STUKin gamma-analyysissä on phd, joka sisältää tiedot näytteen eri suureista, mittauksen tallennusajoista, energiasta, resoluutiosta, kalibrointidatan piikki- ja kokonaistehokkuuksista sekä spektridatasta. Kalibroitipisteiden sovitus tehdään UniSAMPOLla. Erillistä resoluutiokalibrointia ei tarvita, jos spektrin piikkien muoto on riittävän hyvä. Tässä tapauksessa ohjelma sovittaa piikkien muodon laskettujen parametrien avulla. Myös energiakalibraatio voidaan tehdä erikseen UniSAMPO-Shamanilla. Käyttäjä voi muuttaa, poistaa tai lisätä kalibroitipisteitä tarpeen mukaan.

Piikin häntien muotokalibrointi tehdään spektrissä olevien fotopiikkien avulla. Hännän parametriksi merkitään etäisyys piikin huipun ja hännän alkua-



Kuva 7: Manuaalinen analyysi UniSAMPO-Shamanilla

san välillä. Hännän alkuosassa sovitusfunktio muuttuu tasaisesti säännöllisestä Gaussin funktiosta funktioon

$$G(E) = G^{E_j(2E_0 - 2E + E_j)/2\sigma^2} \quad (44)$$

missä G on piikin amplitudi ja E_j hännän parametri [1, 12]. E_j ei ole yleensä sama hännän alku- ja loppupäässä.

Shaman on gammaspektrin piikkien tunnistamiseen tarkoitettu ohjelma, joka laskee tunnistamilleen nuklideille aktiivisuudet, aktiivisuuspitoisuudet ja aktiivisuuden havaitsemisrajat. USS poimii nuklidin hajoamisdatan Shamanin omasta kirjastosta [1]. Kirjaston data on peräisin useasta eri lähteestä, kuten NUDAT-tietokannasta. NUDATilla on pääsy National Nuclear Data Center (NNDC) verkkosivustolle, jossa nuklidien hajoamisdataa päivitetään uusimpien tietojen mukaan.

UniSAMPO ja Shaman kirjoittavat tuloksensa LINSSI-tietokantaan [12], josta niitä voidaan tarkastella NAMIT-käyttöliittymän kautta [6].

Jos kahden eri nuklidin gammapiikit ovat lähellä toisiaan, voi Shaman tunnistaa nuklidin väärin tai se ei pysty tunnistamaan nuklidia yksikäsitteisesti. Shaman voi antaa useita vaihtoehtoja nuklideista, joista kyseinen piikki on

peräisin. Käyttäjä voi poistaa väärän identifioinnin ja lisätä oikean tunnistuksen. Tämän jälkeen Shaman-analyysi käynnistetään uudelleen valitsemalla ylävalikon *Analysis*-kohdasta *Shaman* (Kuva 10).

Piikkien päällekkäisyys vaikuttaa nuklidille laskettuun aktiivisuuteen. Mitä useampaa piikkiä käytetään aktiivisuuden määrittämiseen, sitä enemmän piikkien päällekkäisyydet vääristävät lopputulosta. Jos analyysi tehdään uudelleen eri lähtökaliibroinnilla, pienetkin muutokset kalibraation piikkitehokkuuksissa voivat muuttaa piikkien tunnistuksia.

4 Mittaukset

4.1 Mittaustilat ja laitteisto

STUKin gammalaboratoriossa mittauksia tehdään kahdessa tilassa, joiden nimet ovat γ_1 ja γ_2 . Tilojen suunnittelussa on otettu huomioon mittausten erityisvaatimukset, joita näytteiden pieni aktiivisuus asettaa. Mittaushuoneiden seinämateriaalina on käytetty vähäaktiivista betonia taustasäteilyn vaimentamiseksi. Tilojen radonpitoisuus pyritään pitämään mahdollisimman pienenä ilmastoinnin avulla, koska radonin tytärnuklidit aiheuttavat taustasäteilyä ilmaisimeen [22].

STUKin gammalaboratoriossa on 15 gammaspektrometria, jotka on sijoitettu γ_1 - ja γ_2 -tiloihin. Ilmaisimet ovat sylinterin muotoisia (koaksiaalisia tai tasomaisia). Niiden säteilyä havaitsevat kiteet ovat puhdasta germaniumia. Germanium vuorovaikuttaa herkästi gammasäteilyn kanssa, ja sillä on hyvä energia- ja aikaerotuskyky. Kaikki STUKissa käytettävät gammaspektrometrit ovat HPGe-ilmaisimia (High Purity Germanium). Spektrometreissa käytetään digitaalista pulssinkäsittelysystemiä, jossa korkeaajännite, vahvistin, analyyzaattori ja tehrolähde ovat yhdistettyinä samaan laitteeseen.

Ilmaisimiin tulee korkeaajännite digitaalisesta pulssinkäsittelylaitteesta. Käytettävät jännitteet ovat välillä -4000 V – 5000 V. Esivahvistin on integroitu osaksi ilmaisinkaapelia. Pää- eli lineaarivahvistimet ovat osa pulssinkäsittelylaitteistoa. Vahvistus ja korkeaajännite säädetään MAESTRO-ohjelman kautta [22]. Digitaaliset pulssinkäsittelylaitteet sisältävät analogia-digitaalimuuntimen sekä monikanava-analyyzaattorin.

Kaikki ilmaisimet on sijoitettu sylinterimäiseen lyijysuojaan, jonka tehtävä on vaimentaa taustasäteilyä. Näytteen emittoimat fotonit voivat aiheuttaa karakteristista röntgensäteilyä ilmaisimen lyijysuojaan. Useimmat lyijysuojukset on vuorattu kadmiumilla [9], joka absorboi lyijyn röntgensäteilyä ja

termisiä neutroneja. Kadmiumin röntgensäteilyä vaimennetaan puolestaan kuparikerroksella.

4.2 Mittaussysteemin ominaisuudet

EFFTRAN sisältää yksinkertaistetun mallin mittaussysteemistä (Kuva 5), johon kuuluvat ilmaisimien, standardilähde ja mitattava näyte [20]. Malli sisältää ne ilmaisimen osat, jotka ovat fotonien havaitsemistehokkuuden kannalta keskeisiä. Mallissa ei huomioida kaikkia tehokkuuteen vaikuttavia tekijöitä, kuten kiteen epätasaisuutta ja näytteen poikkeamista ilmaisimen symmetriakselista.

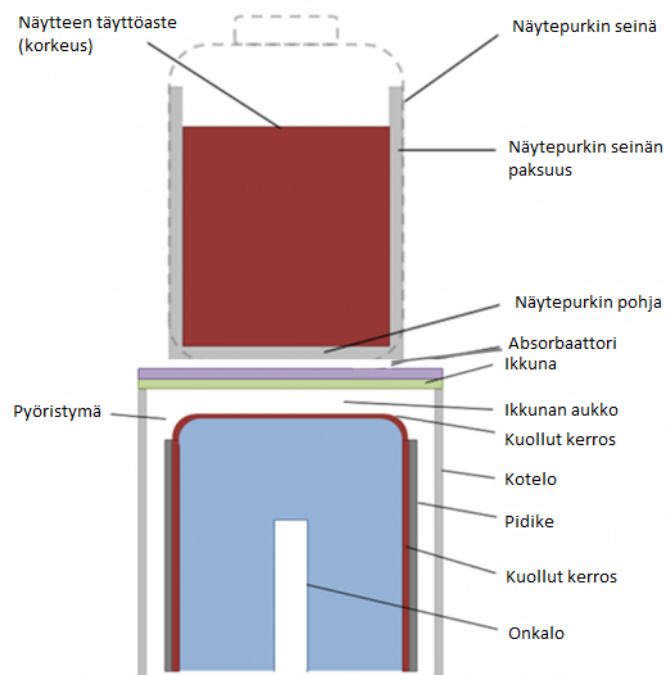
Kiteen ja ikkunan välinen etäisyys (window-to-crystal gap) viittaa ylemmän kuolleen kerroksen ja ikkunan väliseen aukkoon. Kiteen kuolleiksi kerroksiksi kutsutaan pintoja, joissa säteilyn aiheuttamia varauksia ei kerätä. Ilmaisimen ikkuna oletetaan EFFTRANin mallissa tasaiseksi, mutta tosiasiaassa se on lievästi kaareutunut. Tämä huomioidaan merkitsemällä näytepurkin ja ilmaisimen väliseksi etäisyydeksi (container-to-absorber gap) jokin nollasta poikkeava arvo. Kuvan 6 mukaisille näytegeometrioille kyseisiksi etäisyyksiksi oletetaan 0,5 mm (W-purkki) tai 2,0 mm (T-purkki).

Ilmaisimen halkaisija sisältää aktiivisen alueen lisäksi myös sivuilla olevat kuolleet kerrokset. Vastaavasti ilmaisimen pituus sisältää sekä aktiivisen alueen, että ylemmän kuolleen kerroksen. Ilmaisimen ylempi reuna voi olla pyöristynyt. Pyöristymän säde (bulletization radius) ilmaisee kaareutuvuuden säteen millimetreinä.

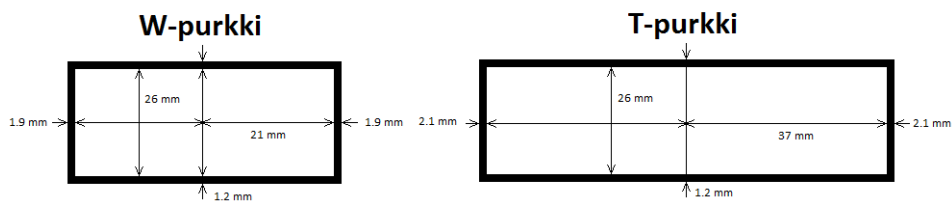
Ilmaisimen onkalo on keskellä kidettä oleva aukko, joka sisältää jäähdystystappin. Jäähdystystappi ei ole EFFTRANin mallissa mukana. Onkalon halkaisijaan voi sisältyä kaareutunut kuollut kerros, jonka materiaali on germanium. Tätäkään osaa ei ole kyseisessä mallissa.

Absorbaattori on ilmaisimen ja näytteen välissä oleva aine, joka absorboi säteilyä. EFFTRANin mallissa absorbaattorin oletetaan sijoittuvan ilmaisimen ikkunan ja purkin pohjan väliin. Ikkunan ja näytepurkin välissä käytetään muovikelmua ilmaisimen suojana. Lisäksi jotkut näytepurkit laitetaan erilliseen muovipussiin. Tämä voidaan ajatella absorbaattoriksi, jonka paksuus on millimetrin kymmenesosa. Absorbaattorin paksuudeksi oletetaan tässä työssä 0,5 mm.

Ilmaisimen sisäosan pidike saa kiteen pysymään paikoillaan. Pääty suojaus on alumiininen kotelo, jonka sisällä on tyhjiö. Ilmaisimien yhdistetään kylmäsojella nestetyypistä. Nestetyypin tehtävä on jäähdyttää ilmaisinta kohinan vähentämiseksi.



Kuva 8: Ilmaisim ja näyte EFFTRANin mallissa [20]



Kuva 9: STUKin gammalaboratoriossa käytettävien näyteastioiden W ja T dimensiot.

4.3 Näytegeometrit ja -luokat

Työssä käsiteltävä EFFTRANin versio on suunniteltu sylinterimäisille näytepurkeille, kuten W- ja T-geometrioille (Kuva 6). Näissä purkeissa mitattaville näytteille on laadittu kokeelliset tehokkuuskalibroinnit W0- ja T0-näytteillä, jotka ovat NPL:n (National Physics Laboratory) sertifioimia [1]. Nolla tarkoittaa näytteen korkeutta, joka on merkityksettömän pieni (noin 0,2 mm). "Nollapaksuisilla" standardilähteillä saadaan tarkkoja tuloksia tehokkuuskalibroinneissa, koska niissä ei tapahdu itseabsorpiota. W0- ja T0-standardilähteet ovat ilmasuodattimia, joihin on laitettu radioaktiivista ainetta. Radionuklidien halutaan jakautuvan näytteeseen mahdollisimman

homogeenisesti. Mitattavat radionuklidit on sekoitettu liuokseen, joka on laitettu standardin materiaaliin tipoittain.

STUKin gammaspektrometreillä mitataan vuosittain satoja ilmanäytteitä. Ilmanäytteet on tavallisimmin kerätty joko lasikuitusuodattimiin tai aktiivihiihluodattimiin. Niillä suodatetaan ilmaa sellaisista ympäristöistä, joissa radioaktiivisia aineita mahdollisesti esiintyy. Ilmanäytteet taitellaan ja puristetaan niin, että ne mahtuvat mittausastioihin. Suuri osa STUKissa mitattavista ilmanäytteistä on peräisin ydinvoimalaitosten ympäristöstä. STUKilla on myös omia ilmankerääjiä valtakunnallista ilman radioaktiivisuusvalvontaa varten. Ilmanäytteitä analysoimalla varmistetaan, ettei ulkoilman aktiivisuuspitoisuus ole tarkasteltavalla alueella liian suuri. Ilmanäytteiden aktiivisuuspitoisuudet ovat tyypillisesti Bq/n miljoonasosia.

Maito on yleinen näyteluokka STUKin gammaspektrometriassa. Maitonäytteitä mitataan tavallisesti W- ja M-purkeissa. Maidon kemiallinen koostumus vaihtelee [23, 24], mikä aiheuttaa epävarmuutta tuloksiin pienienienergiisten fotonien osalta. Maidon alkuaineiden pitoisuuksien oletetaan vaihtelevan enintään 5 % [24].

Sedimentti, maaperänäytteet ja kasvit ovat myös keskeisiä STUKin käyttämiä näyteluokkia. Niiden alkuainekoostumukset eivät ole yleisesti tunnettuja. Tämä lisää piikkitehokkuuksien epävarmuutta alle 100 keV:in energioilla ja asettaa siten haasteita myös uuden analyysimenetelmän testaamiseen.

Taulukko 1: B6-ilmaisimen ja standardipurkin ominaisuudet Efftran-testauksessa.

Ilmaisimen ominaisuus		Näytepurkin ominaisuus	W0	T0
korkeus	82,0 mm	pohjan paksuus	1,2 mm	1,2 mm
halkaisija	30,0 mm	sivujen paksuus	1,9 mm	2,1 mm
pyöristymä	0 mm	korkeus	0,2 mm	0,2 mm
ylempi kuollut kerros	1,5 mm	halkaisija	45,8 mm	77,2 mm
sivun kuollut kerros	3,0 mm	materiaali	SiO_2	SiO_2
onkalon pituus	6,0 mm	materiaalin tiheys	$0,2 \frac{g}{cm^3}$	$0,2 \frac{g}{cm^3}$
ilmaisimen materiaali	Ge			
pidikkeen paksuus	2,0 mm			
pidikkeen materiaali	Al			

4.4 Purkitus

Näytteen purkitus on keskeinen osa mittausprosessia. Näytteet pyritään purkittamaan ja asettamaan ilmaisimeen siten, että mahdollisimman suuri osa

radionuklideista saadaan mahdollisimman lähelle ilmaisinta. Tällöin mitattavia radionuklideja ei yleensä tarvitse erottaa muusta näytteen materiaalista. Kvalitatiivisissa analyysissä näytteen valmistusta ja käsittelyä ei välttämättä tarvita, mutta kvantitatiivisissa mittauksissa analysoitavien nuklidien on oltava näytteessä tasaisesti jakautuneina. Kiinteät näytteet jauhetaan ja homogenisoidaan ennen mittausta.

Ympäristön radioaktiivisten aineiden määrittämisessä näytemateriaali pyritään yleensä saamaan mahdollisimman pienen tilavuuteen. Ympäristönäytteiden aktiivisuudet ovat tavallisesti pieniä. Ilmaisimelta tarvitaan riittävän suuri piikkitehokkuus, jotta näytteiden emittoimat fotonit erottuvat taustasta. Mikäli näytettä ei voida riittävästi konsentroida, se tulee mitata Marinelli-purkissa tehokkuuden parantamiseksi. Marinelli-purkki ympäröi sekä sylinterimäisen ilmaisimen vaippaa että sen päätä. EFFTRANissa näytteet oletetaan homogeenisiksi ja nuklidit tasaisesti jakautuneiksi. Aineen mahdollista epähomogeenisuutta ei ole huomioitu EFFTRANin epävarmuusanalyysissä.

Näytteen tiheydellä ja näytepurkin täyttöasteella on keskeinen merkitys gammaspektrometriassa. Tehokkuus riippuu voimakkaasti mittausgeometriasta ja näytteen sisäisestä absorptiosta. Itseabsorptiota tapahtuu vähemmän, kun väliaineen tiheys on pieni. Tällöin suurempi osa gammafotoneista kulkeutuu näytteen läpi ilmaisimeen. Mitä tiheämpi näyte on, sitä enemmän se absorboi säteilyä ja sitä pienempiä ovat fotonien piikki- ja kokonaistehokkuudet.

4.5 Tehokkuuskalibrointi

Ilmaisimen kokeellinen tehokkuuskalibrointi on tavallisesti tehty muutamalle erilaiselle näyteastialle. Sylinterin mallisille astioille laaditaan peruskalibrointi, josta muut kalibroinnit johdetaan spektrin analyysin aikana laskennallisesti yhdistetyllä korkeus-tiheyskorjauksella.

STUKin gammalaboratoriossa käytettävät pistelähdestandardit kattavat energia-alueen 59,5–1836 keV. Mitattuihin pisteisiin sovitetaan kalibrointikäyrä, joka on muotoa [18]

$$\log(\epsilon) = \sum (a_i (\frac{E}{E_0})^{i-1}). \quad (45)$$

Tässä E ja E_0 ovat näytteen ja referenssilähteen energiat. Kertoimet a_i ovat sovitusparametreja. Sovitus voidaan tehdä erikseen pienille (<100 keV) ja

suurille (>100 keV) energioille. Mittaustulosten avulla sovitetaan ilmaisimen tehokkuuskäyrä ja funktio, joka kuvaa tehokkuuden riippuvuutta fotonin energiasta. Samoin voidaan määrittää geometrian ja absorptio- ja korjauskertoimet vertailugeometrian tai -aineen suhteen.

STUKin gammalaboratoriossa on sarja referenssilähteitä, joiden aktiivisuudet tunnetaan tarkasti. Näitä lähteitä mittaamalla varmistetaan, että kalibrointi on tehty oikein, eli tulokseksi saadaan samoja aktiivisuuksia kuin lähteen todelliset aktiivisuudet. Standardilähteen tehokkuuskäyrästä johdetaan mitattavan näytteen tehokkuuskäyrä korkeus-tiheyskorjauksella.

EFFTRAN muuntaa standardilähteen tehokkuuskäyrän mitattavan näytteen tehokkuuskäyräksi käyttämällä korkeus-tiheyskorjausta. Näytteen radionuklideilla on usein eri energioita kuin standardilähteellä. Erot näiden energioiden piikkitehokkuuksissa on otettava huomioon kalibroitikäyriä laskettaessa.

Taustasäteily on otettava huomioon gammaspektrometrin tehokkuuskalibroinnissa. Taustasäteilyksi luokitellaan säteily, joka on peräisin muualta kuin mitattavasta näytteestä. Taustamittauksessa määritetään spektrometrin havaitsema pulssijakauma ympäristön säteilystä. Tämä tehdään suorittamalla noin 10 päivän mittaus ilman säteilylähdettä. Taustasäteilyä syntyy mm radioaktiivisista aineista mittaustilojen ilmassa, lyijysuojassa ja muissa ympäröivissä materiaaleissa sekä ilmaisimen eri osissa. Kosmisten hiukasten vuorovaikutukset mittaussysteemin kanssa voivat myös aiheuttaa taustasäteilyä.

Taustasäteilyn spektrin fotopiikkejä tarvitaan laskettaessa piikkien todellisia aloja näytteiden gammaspektreille. Todellinen fotopiikin ala on $N_p = N_b - N_t$, missä N_b ja N_t ovat pulssimäärät gammaspekttrin fotopiikille ja taustalle.

4.6 Signifikanssi ja havaitsemisraja

Nuklidien identifioinnissa määritetään fotopiikkiä vastaavat nuklidit ja niiden aktiivisuudet (tai aktiivisuuspitoisuudet). Fotopiikin täytyy erottua taustasta, jotta sitä vastaava nuklidi voidaan identifoida. Fotopiikin merkittävyyttä kutsutaan signifikanssiksi. Mitä suurempi on nuklidin signifikanssi, sitä parempi on nuklidin selitysaste, eli sitä todennäköisemmin nuklidin identifointi on tehty oikein.

Kaikkia ympäristönäytteiden radionuklideja ei voida havaita gammaspektrometrillä mittauksilla. Näytteiden radionuklidien aktiivisuudet voivat olla niin pieniä, etteivät ne erotu taustasta, tai ilmaisimen herkkyyks ei riitä

niiden havaitsemiseen. Alin mitattava aktiivisuuspitoisuus (Minimum Detectable Activity, MDA) lasketaan yhtälöstä

$$MDA = \frac{(2,71 + 4,65 \cdot \sqrt{\sigma})}{E_\gamma \cdot \epsilon(E_\gamma) \cdot I_\gamma \cdot m} \quad (46)$$

missä σ on taustapiikin pulssimäärän keskihajonta, E_γ fotopiikin energia, $\epsilon(E_\gamma)$ fotopiikin tehokkuus, I_γ fotonin emissiotodennäköisyys ja m näytteen massa. MDA on merkitty gamma-analyysin tuloksiin NAMITissa kohdan "havaitsemisraja"alle.

Mittauslaitteen herkkyydellä tarkoitetaan laitteen kykyä erottaa säteilyn intensiteetti tai radioaktiivisen aineen määrä, joka voidaan mitata tai havaita tietyllä todennäköisyydellä. Kriittinen taso (L_c) kuvaa säteilyn intensiteettiä, joka on taustasäteilyn intensiteettiä suurempi. Havaitsemisraja (L_d) on ilmaisimen mittaama säteilyn intensiteetti, joka voidaan havaita tietyllä todennäköisyydellä. Tärkeimmät kriittiseen tasoon ja havaitsemisrajaan vaikuttavat tekijät ovat taustasäteily, mittalaitteen havaitsemistehokkuus ja mittausaika.

Kriittinen taso ja havaitsemisraja voidaan laskea Poissonin jakaumaa käyttäen, kun taustasäteily ja epävarmuudet on otettu huomioon. 95 %:n luottamusvälillä parametrit L_c ja L_d ovat [12]

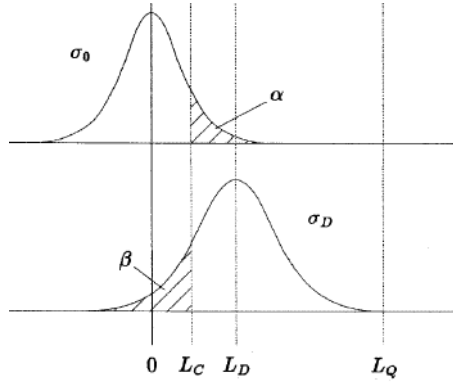
$$L_c = k_\alpha \cdot \sqrt{2} \cdot \sigma_B \quad (47)$$

$$L_D = L_c + \frac{k_\beta^2}{2} + k_\beta \sqrt{L_c + \left(\frac{k_\beta}{2}\right)^2 + \left(\frac{L_c}{k_\alpha}\right)^2} \quad (48)$$

missä k_α ja k_β ovat reaaliarvoja standardisoidulle normaalijakaumalle vastaten todennäköisyyksiä $1-\alpha$ ja $1-\beta$ (Kuva 7).

4.7 Tehokkuuden epävarmuus

Epävarmuus kuvaa määrällistä arvioita rajoista, joiden sisällä mittaustulosten oletetaan olevan tietyllä todennäköisyydellä. Aktiivisuuden epävarmuuden on oltava riittävän pieni, jotta nuklidi voidaan ottaa analyysiin mukaan.



Kuva 10: Mitatun signaalin haveitsemisrajat. Tummennetut kohdat todennäköisyysjakauman alla tarkoittavat todennäköisyyksiä α ja β [12].

Ilmaisimen ja näytteen parametreihin liittyy aina epävarmuutta, joiden vaikutukset täytyy huomioida laskettaessa piikkitehokkuutta. Daniel Orth pohitti raportissaan [24] eri epävarmuustekijöiden osuutta piikkitehokkuuden kokonaisepävarmuuteen. Kaikkien suureiden epävarmuuksia ei voida tarkasti määrittää, joten niille tulee käyttää arvioita.

Näytteen täyttökorkeuden mittausepävarmuudeksi σ_h oletetaan jokin kiinteä arvo. Korkeus täytyy mitata käsin, jos purkkia ei ole täytetty kokonaan. Tällaiseen korkeuden määrittämiseen liittyy mittausmenetelmän epävarmuus. Kun näytteen korkeus on suuri, mitatun korkeuden suhteellinen epävarmuus on käytännössä 0. Mitä pienempi on purkin täyttöaste, sitä suurempi on σ_h suhteessa näytteen korkeuteen. Tämä kasvattaa fotonien piikkitehokkuuden kokonaisepävarmuutta.

Näytteen tiheys lasketaan punnitun massan ja näyteastian tilavuuden avulla. Vaa'an epätarkkuuden oletetaan olevan enimmillään 1 %. Myös näytepurkkien tilavuuksissa on pientä vaihtelua. Tiheyden epävarmuuden vaikutus on sitä suurempi, mitä suurempi on purkin täyttöaste. Näytteen massa ja tilavuus voidaan kuitenkin laskea määrättyllä tarkkuudella, joten tiheyden epävarmuus ei vaikuta merkittävästi piikkitehokkuuden kokonaisepävarmuuteen.

Kun näytteen alkuainekoostumusta ei tiedetä tarkasti, jokaisen alkuaineen pitoisuudelle on annettava epävarmuus. Kyseiset epätarkkuudet vaihtelevat eri näytteillä. Esimerkiksi maaperä- ja sedimenttinäytteiden alkuainekoostumusta ei ole mahdollista selvittää työssä käytettävien menetelmin. Tehokkuudet on laskettava näytteille erikseen käyttämällä suurimpia ja pienimpiä arvoja alkuainekomponenteille.

Näytepurkkien dimensioissa voi myös esiintyä vaihtelua. Purkin pohjan ja sivujen paksuudella on vaikutusta fotonien piikkitehokkuuteen, joten niiden

tilastollinen vaihtelu täytyy huomioida laskettaessa piikkitehokkuuden kokonaisepävarmuutta.

EFFTRAN olettaa mittaussysteemin olevan aina symmetrinen. Tämä ei kuitenkaan käytännössä toteudu, sillä näytettä on vaikeaa saada asetettua täsmälleen ikkunan keskelle. Näytteen poikkeaminen symmetria-akselista (σ_{axis}) kasvattaa piikkitehokkuuden epävarmuutta.

Edellä mainittujen tekijöiden lisäksi EFFTRAN lisää automaattisesti piikkitehokkuuden epävarmuuteen 0,7 %. Tämä tulee laskentaan liittyvästä epävarmuudesta. Tehokkuuden kokonaisepävarmuudeksi saadaan näin [24, 25]

$$\sigma = \sqrt{\sigma_h^2 + \sigma_{comp}^2 + \sigma_\rho^2 + \sigma_{b,s}^2 + \sigma_d^2 + \sigma_{EFF}^2 + \sigma_{axis}^2} \quad (49)$$

missä

σ_h on näytteen täyttökorkeuden aiheuttama epävarmuus,

σ_{comp} on alkuainekoostumuksen aiheuttama epävarmuus,

σ_ρ on näytteen tiheyden aiheuttama epävarmuus,

$\sigma_{b,s}$ on purkin pohjan ja sivujen paksuuden aiheuttama epävarmuus,

σ_d on purkin halkaisijan aiheuttama epävarmuus,

σ_{EFF} on EFFTRANin lisäämä epävarmuus ja

σ_{axis} aiheutuu näytteen poikkeamisesta symmetria-akselista.

Puutteelliset tiedot ilmaisimesta aiheuttavat myös epävarmuutta tuloksiin, mutta niiden vaikutusta kokonaisepävarmuuteen on vaikeaa arvioida. B6-ilmaisimen dokumentteihin on merkitty vain aktiivisen alueen korkeus ja halkaisija. Ne ovat havaitsemistehokkuuden kannalta keskeisimmät ilmaisimen suureet, mutta muillakin ilmaisimen osilla on tehokkuuden kannalta merkitystä.

5 Analyysien tulokset

Nuklidien aktiivisuudet (tai aktiivisuuspitoisuudet) määritetään USS-analyyseissä kahdella tavalla: LSQ- ja primääripiikkimenetelmällä. LSQ-menetelmässä nuklidin jokainen fotopiikki huomioidaan laskettaessa nuklidille aktiivisuutta. Primääripiikkimenetelmässä aktiivisuus määritetään nuklidille sen pääpiikistä, eli piikistä, jolla on suurin ala.

LSQ-menetelmän toimiminen edellyttää, että analyysin energiakalibrointi on tehty oikein. Kun nuklidin spektrissä on useita fotopiikkejä, virheet piikkien

tunnistuksissa aiheuttavat väärän lopputuloksen. LSQ-menetelmä antaa aktiivisuudelle liian pienen virhearvion, sillä se käsittelee jokaisen piikin ikään kuin erillisenä mittaustuloksena. Myös primääripiikkimenetelmä voi johtaa virheelliseen tulokseen, jos pääpiikki on esim. huonosti sovitettu tai sillä on suuri epävarmuus. LSQ-menetelmä saattaa virheellisesti huomioida fotopiikkejä, joiden energia on lähes sama kuin analysoitavan nuklidin piikeillä.

Peruskalibrointi (Taulukko 2, tapaukset A ja B) ja EFFTRANin kalibrointisiirto (Taulukko 2, tapaukset C-H) saattavat johtaa toisistaan poikkeaviin tuloksiin saman nuklidin LSQ-aktiivisuudelle. Ohjelmien käyttämissä nuklidikirjastoissa on eroa pienten piikkien tiedoissa ja niille merkityissä tuottonopeuksissa. Kun aktiivisuuden määrittämiseen käytetään useita fotopiikkejä, voivat pienetkin erot piikkien lähtötiedoissa johtaa eroihin fotoneille laskeutuissa tehokkuuksissa ja sitä kautta nuklideille määritetyissä aktiivisuuksissa. Tässä työssä vertaillaan primääripiikkimenetelmillä laskettuja aktiivisuuksia, koska kyseisten piikkien tuottonopeudet ovat hyvin tunnettuja.

Jokaiselle ilmaisimelle ja näytegeometrialle on määritetty kokeelliset kalibraatiot, jotka löytyvät NAMITin ylävalikon (Kuva 10) "Laatu-osiosta. "Ylläpito → Muut-kohdan alta löytyy "Efftran-testaus", johon uudelleen analysoitavan näytteen tiedot syötetään. Efftran-testauksella tarkoitetaan kuvan 11 (oik.) mukaista ympäristöä, jossa kalibrointisiirto tehdään EFFTRANin avulla analysoitavalle näytteelle.

Taulukossa 2 on lueteltu lähtötiedot, joilla tämän työn kalibroinnit/kalibrointisiirrot suoritetaan. W- ja T-purkkien gamma-analyyseissä käytetään nykyisin peruskalibrointeja (tapaukset A ja B), joista näytteelle johdetaan tehokkuuskäyrä USS:n korkeus-tiheyskorjauksella. Tapausten A ja B pohjana käytetään NPL:n 0-paksuisten W0- ja T0-standardilähteiden piikkitehokkuuksia. A- ja B-tapauksissa standardiksi valitaan kalibrointilähde, jolla on sama geometria kuin mitattavalla näytteellä. Tapauksissa C,D,E ja G käytetään samanlaista asetelmaa kuin peruskalibroinneissa, mutta USS-analyysi tehdään käyttämällä uutta kalibraatio id:tä, joka saadaan Kuvan 11 (oik.) mukaisella Efftran-testauksella. Tapauksissa F ja H analyysit tehdään käyttämällä EFFTRANin kalibrointisiirtoja, joissa Efftran-testauksen mukaiselle standardille ja näytteelle on merkitty eri geometria. Kalibraatio 500 (21175) on tehty B6-ilmaisimen Efftran-testausta varten W0-geometrialla NPL:n näytteen avulla. Vastaavasti kalibraatio 520 (31837) on tarkoitettu T-geometriassa olevan ja B6-ilmaisimella mitattavan näytteen Efftran-testaukseen. Kalibraatioita 500 ja 520 kuvataan NAMITissa tunnuksella X.

Kuvassa 11 Efftran-testausta suoritetaan 5 mm korkealle vesinäytteelle, jonka tiheys on $1 \frac{g}{cm^3}$. Näyte on mitattu B6-ilmaisimella, ja kalibrointisiirto johde-

taan peruskalibroinnista 13674. Kuvan 12 mukainen kalibroitisiirto on siis tapauksen C mukainen Taulukossa 3.

BEGe-ilmaisimella mitattavan W-purkissa olevan näytteen analyysit johdetaan normaalisti W0-kalibraatista. T-geometriassa oleville näytteille käytetään vastaavasti T0-kalibraatiota. Kun USS-analyysille tehdään kalibroitisiirto EFFTRANilla, syötetään Efftran-testaukseen ympäristötietokannan kalibraatio id, joka sopii analysoitavan mittauksen geometrialle. "Kalibraatio id" on NAMITissa käytettävä termi kalibraation kuvaamiseen. STUKissa käytettävien BEGe-kiteiden kalibraatio id:t löytyvät liitteestä A.

Taulukko 2: USS-analyyseissä käytettyihin lähtökaliointeihin viitataan tunnuksilla A-H. "Setup" (asetelma) tarkoittaa lähtökaliointin geometriaa. Tapauksissa C-H taulukon mukainen kalibraatio id viittaa sen lähtökaliointin tunnukseen, jota on käytetty Efftran-testauksessa (Kuvassa 11 vasemmalla 13674). Tapausten A ja B kohdalla näyte lähetetään suoraan USS-analyysiin (Kuva 11, oik.) käyttämällä Taulukon 2 mukaista kalibraatio id:tä. Standardilähteen ja mitattavan näytteen geometriat (geom. (std) ja geom. (näyte)) ovat oikeanpuoleisissa sarakkeissa.

tapaus	setup	geom. (std)	geom. (näyte)
A	ilmaisoin_W0, perus	W	W
B	ilmaisoin_T0, perus	T	T
C	ilmaisoin_W0, EFF	W	W
D	ilmaisoin_T0, EFF	T	T
E	X, EFF	W	W
F	X, EFF	T	W
G	X, EFF	T	T
H	X, EFF	W	T

Taulukko 3: Taulukon 2 mukaiset tapaukset (A-H) B6-ilmaisinta käytettäessä. Lähtökaliointien B06_W0, B06_T0, X (500) ja X (520) mukaiset tehokkuuskäyrät ovat piirrettyinä Kuvassa 12

tapaus	setup	kalibraatio id	geom. (std)	geom. (näyte)
A	B06_W0, perus	13674	W	W
B	B06_T0, perus	7635	T	T
C	B06_W0, EFF	13674	W	W
D	B06_T0, EFF	7635	T	T
E	X, EFF	21175	W	W
F	X, EFF	31837	T	W
G	X, EFF	31837	T	T
H	X, EFF	21175	W	T

EFFTRANin kalibroitisiirrossa EFFTRAN laskee näytteelle tehokkuuskäyrän, jota käytetään lähetettäessä näyte uudelleen analyysiin (Kuva 11, vas.). Automaattianalyysin tulokset tallentuvat LINSSI-tietokantaan, ja ne ovat

Namit

Tilaukset

Näytteet

Määrittelyt

Raportointi

Laatu

Ylläpito

Rekisterit

Käyttäjät

Tulosten kirjaus

Muut

Korjaus- ja testaustoiminnot

Lähetä mittaukset uudelleen USS-analyysiputkeen

Analyysitulosten vertailu gammamittauksille

Kalibraatioiden vertailut

Gamma99-USS-tulosvertailut yhteenveto (avaus kestää hetken)

Lähetä mittaukset uudelleen USS-analyysiputkeen valitulla kalibraatiolla

Huom! Kalibraation id arvoksi ei tule syöttää käyttöliittymässä pääasiassa näkyvää

Näytteen tunnus:

Mittauksen id:

Kalibraation id:

Lähetä

Efftran-testaus

Huom! Kalibraation id arvoksi ei tule syöttää käyttöliittymässä pääasiassa näkyvää

Kalibraatio id:

Ilmaisin:

Näytteen materiaali:

Näytteen korkeus:

Näytteen tiheys:

Purkki:

Lähetä

Näytteen poisto

Näytteen tilan korjaus

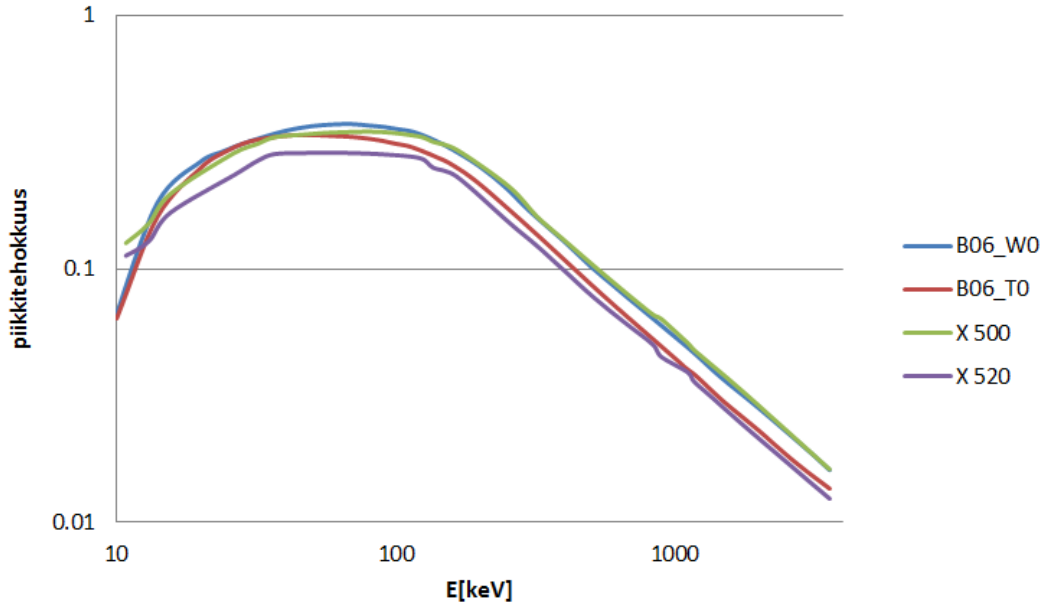
Näytteen radiokemiallisen testin tilan korjaus

Kuva 11: Kohdan "Korjaus- ja testaustoiminnot" alta (oik.) löytyy kenttä, johon kirjoitetaan USS-analyysiin lähetettävän näytteen tunnus, sekä analysoitavan mittauksen id ja tehokkuuskalibraatio, jonka avulla kyseinen USS-analyysi tehdään. Vasemmalla puolella kuvaa näkyy "Efftran-testaus", johon syötettävillä tiedoilla näytteelle tehdään kalibroitisiirto USS-analyysiä varten.

nähtävissä hetki mittauksen lopetuksen jälkeen. Analyysin valmistuttua avataan näytteen phd-tiedosto gammasrv3-palvelimella. Näytteen tiheys ja korkeus pitää merkitä nollaksi sen phd-tiedostossa. Muuten USS suorittaa näytteelle uuden korkeus-tiheyskorjauksen. Tämä johtaa virheelliseen lopputulokseen, koska EFFTRAN on jo aiemmin tehnyt korkeus-tiheyskorjauksen kalibroitisiirrossa. Kun tarvittavat muutokset on tehty phd-tiedostoon, näyte lähetetään uudelleen analyysiin gammasrv3:sta. Lopulliset tulokset ilmestyvät NAMITiin hetkeä myöhemmin.

6 Tehokkuuksien vertailu

Tehokkuuksien vertailussa USS-analyysijä tehtiin uudelleen tapausten C ja D mukaan. Tarkoituksena oli selvittää, saadaanko näin yhteneviä tuloksia tapausten A ja B mukaisten analyysien kanssa. Gamma-analyysit suoritettiin uudelleen 59:lle näytteelle, joiden mittaukset ja automaattianalyysit oli tehty aiemmin peruskalibrointeja käyttäen (tapaukset A ja B). Mittauksissa oli käytetty viittä eri BEGe-ilmaisinta (B4,B5,B6,B7 ja FX1). Näiden ilmaisimien tietojen ja tapausten C ja D mukaisten suureiden avulla näytteille tehtiin kalibroitisiirrot Efftran-testauksella. Saatiin uusi kalibraatio id, jolla näyte lähetettiin uudelleen USS-analyysiin. Näin saatujen analyysitulosten tehokkuuksia verrattiin näytteen alkuperäisten analyysitulosten mukaisten



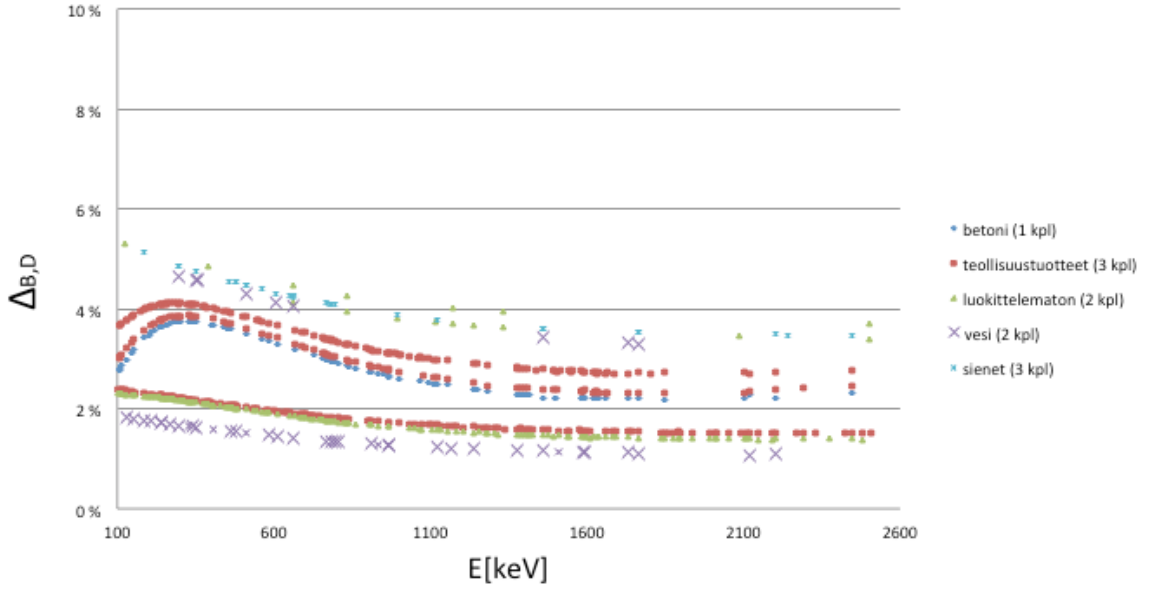
Kuva 12: B6-ilmaisimen peruskalibrointien tehokkuuskäyriä. Tunnukset B06_W0 ja B06_T0 viittaavat W- ja T-purkeille tehtyihin peruskalibrointeihin (Kuva 12) B6-ilmaisimella NPL:n 0-paksuisilla näytteillä. Kalibroinnit X ovat puolestaan 0-paksuisella näytteellä tehtyjä peruskalibrointeja Efftran-testausta varten. Kalibrointi 500 on tehty W-purkille ja 520 T-purkille.

tehokkuuksien kanssa. Vertailussa käytettiin pääosin automaattianalyysien tuloksia. Muutamalle näytteelle jouduttiin kuitenkin tekemään energia- ja muotokalibrointi manuaalisesti.

USS on osoittautunut toimivaksi piikkitehokkuuksien laskemisessa [1]. Jos EFFTRAN suorittaa kalibrointisiirron oikein, sen avulla laskettujen piikkitehokkuuksien pitäisi olla samaa suuruusluokkaa kuin peruskalibrointien A ja B avulla saadut tulokset samoille fotoneille. EFFTRAN-testauksessa ei vielä huomioitu näytteen alkuainekoostumusta, koska tarkastelun kohteena olivat yli 100 keV:in fotonit. Jokaiselle näytetyypille merkittiin aluksi sama materiaali (vesi).

EFFTRAN ja USS käyttävät erilaista korkeus-tiheyskorjausta piikki- ja kokonaistehokkuuksien laskemiseen. Näin olleen tapausten C ja D avulla saatujen analyysitulosten odotettiin poikkeavan alkuperäisistä, eli tavoilla A ja B saaduista tuloksista sitä enemmän, mitä suurempi on analysoitavan näytteen korkeus. Kun analyysi tehdään EFFTRANin kalibrointisiirron avulla, USS laskee c_{TCS} -kertoimet käyttäen EFFTRANin laskemia piikki- ja kokonaistehokkuuksia. TCS-kertoimet voidaan laskea myös EFFTRANilla, mutta sitä ei tässä työssä tehty.

Tavoilla A ja C laskettuja piikkitehokkuuksia verrattiin toisiinsa kaavan



Kuva 13: Tehokkuuspoikkeama $\Delta_{B,D}^{eff}$ T-purkeissa mitatuille näytteille.

$$\Delta_{A,C}^{eff} = \frac{\epsilon_C - \epsilon_{avg}}{\epsilon_{avg}} \quad (50)$$

$$\Delta_{A,C}^{eff} = \frac{\epsilon_C - \frac{\epsilon_A + \epsilon_C}{2}}{\frac{\epsilon_A + \epsilon_C}{2}} \quad (51)$$

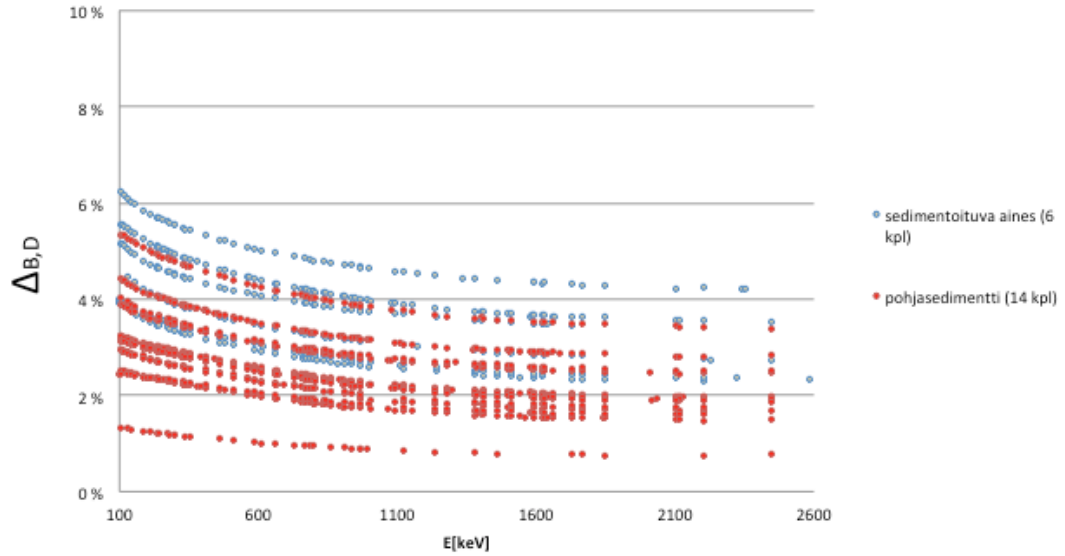
$$\Delta_{A,C}^{eff} = \frac{\epsilon_C - \epsilon_A}{\epsilon_C + \epsilon_A} \quad (52)$$

mukaan. Tässä ϵ_A on fotonille laskettu piikkitehokkuus tapaa A käyttäen. Termi ϵ_C tarkoittaa saman fotonin piikkitehokkuutta tavan C avulla määritettynä. Tehokkuuksista ϵ_A ja ϵ_C otettiin keskiarvo ϵ_{avg} , johon tehokkuutta ϵ_C verrattiin. Vastaavasti tapauksilla B ja D saatuja tehokkuuksia verrattiin toisiinsa kaavan

$$\Delta_{B,D}^{eff} = \frac{\epsilon_D - \epsilon_B}{\epsilon_D + \epsilon_B} \quad (53)$$

mukaan. Poikkeamat $\Delta_{A,C}^{eff}$ ja $\Delta_{B,D}^{eff}$ merkittiin Kuviin 13-15 energian funktiona.

Kuvista 13-15 nähdään, että piikkitehokkuudet olivat tapausten C ja D avulla laskettuina systemaattisesti suurempia. $\Delta_{A,C}^{eff}$ ja $\Delta_{B,D}^{eff}$ olivat suurimmillaan

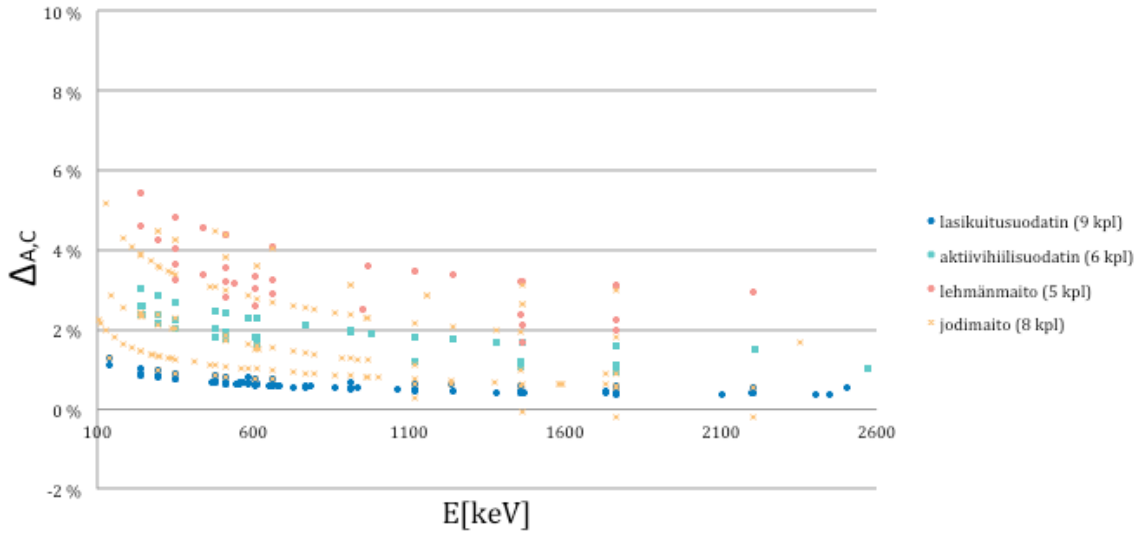


Kuva 14: Tehokkuuspoikkeama $\Delta_{B,D}^{eff}$ T-purkeissa mitatuille sedimenttinäytteille.

noin +6 % (Kuvat 13-15), mutta pienenevät energian kasvaessa. Poikkeamat $\Delta_{B,D}^{eff}$ (Kuvat 13 ja 14) olivat keskimäärin hieman suurempia kuin poikkeamat $\Delta_{A,C}^{eff}$ (Kuva 15). $\Delta_{A,C}^{eff}$:n ja $\Delta_{B,D}^{eff}$:n suuruudet riippuivat voimakkaasti siitä, miten suuri korkeus näytteellä oli. T-purkeissa mitataan usein näytteitä, joiden alkuainekoostumukset ovat huonosti tunnettuja. Joissain tapauksissa tämä voi vaikuttaa piikkitehokkuuteen myös fotonin energian ollessa yli 100 keV (Kuva 1).

$\Delta_{A,C}^{eff}$:t olivat pienimpiä lasikuitusuodattimien analyysituloksissa (< 2 %). Puristetun lasikuitusuodattimen korkeus on 3 mm, mikä on pienempi kuin muilla työssä analysoiduilla näytteillä. Koska tehokkuuspoikkeamat johtuvat eroista EFFTRANin ja USS:n korkeus-tiheyskorjauksissa, $\Delta_{A,C}^{eff}$ ja $\Delta_{B,D}^{eff}$ ovat sitä pienempiä, mitä pienempi on analysoitavan näytteen oletettu korkeus. Lasikuitusuodattimen koostumus ja geometria ovat lähempänä W0-standardin suureita kuin muiden näytteiden ominaisuudet. $\Delta_{A,C}^{eff}$:t olivat aktiivihiilisuodattimilla suurempia kuin lasikuitusuodattimilla (1-4 %), mutta pienempiä kuin muilla näytteillä keskimäärin.

Maitonäytteiden fotonien piikkitehokkuudet olivat tapauksen C avulla laskettuna suurempia kuin ϵ_A :t (Kuva 15). Kaikki tapauksessa C analysoidut maitonäytteet täyttivät koko purkin. Erot EFFTRANin ja USS:n korkeus-tiheyskorjauksissa ilmenevät kyseisten näytteisen tuloksissa, koska ϵ_C :t olivat yhtä poikkeusta lukuun ottamatta suurempia kuin ϵ_A :t. $\Delta_{A,C}^{eff}$:t vaihtelivat lehmänmaito- ja jodimaitonäytteiden tuloksissa -1 %:n ja 6 %:n välillä.



Kuva 15: Tehokkuuspoikkeama $\Delta_{A,C}^{eff}$ W-purkeissa mitatuille näytteille.

Yhden jodimaitonäytteen $\Delta_{A,C}^{eff}$ oli suurilla energioilla (> 1200 keV) negatiivinen.

Tapauksessa D analysoitiin T-purkeissa mitattuja näytteitä, joiden materiaalit olivat muun muassa pohjasedimenttiä tai sedimentoituvaa ainesta. Näiden näytteiden korkeudet vaihtelevat muutamasta millimetristä aina 27 millimetriin asti. Myös tiheydet ovat näytekohtaisia, ja niiden suuruudet sijoittuvat analysoitavissa näytteissä välille 0,4-1,0. Sedimentoituvan aineksen $\Delta_{B,D}^{eff}$ oli suurimmillaan noin 6 % (Kuva 14). Pohjasedimenttien $\Delta_{B,D}^{eff}$:t olivat pienimmillään alle 1 %.

$\Delta_{B,D}^{eff}$:t olivat odotetusti suurimpia näytteille, joilla on suuri korkeus. $\Delta_{B,D}^{eff}$:t pienenevät energian funktiona tasaisesti suurimmalla osalla näytteistä. Kalibrointisiirrot tehtiin EFFTRANin avulla kahdelle luokittelemattomalle näytteelle, joista toisen $\Delta_{B,D}^{eff}$:t olivat keskimääräistä pienempiä ($< 2,5$ %) ja toisen selvästi suurempia (1,2-5,5 %). Luokittelemattomien näytteiden alkuaikakoostumukset eivät ole tunnettuja. Niiden tiheydet ovat usein paljon suurempia kuin työssä analysoiduilla näytteillä keskimäärin ($> 1 \frac{g}{cm^3}$). Tämä aiheuttaa epävarmuutta gamma-analyysien tuloksiin, sillä sekä USS:n, että EFFTRANin korkeus-tiheyskorjauksissa on omat rajoitteensa. Ne eivät välttämättä sovellu näytteille, joiden koostumus poikkeaa huomattavasti standardilähteen koostumuksesta.

Betoninäytteiden ja teollisuustuotteiden $\Delta_{B,D}^{eff}$:t käyttäytyivät muiden näytteiden $\Delta_{B,D}^{eff}$:oihin verrattuna poikkeuksellisesti. Ne kasvoivat välillä 100-300

keV ja pienenevät yli 300 keV:in energioilla. Sekä betonin että teollisuustuotteiden alkuainekoostumukset vaihtelevat, eikä niistä aina ole saatavilla tarkkaa tietoa. Näiden näytteiden tiheydet ovat myös huomattavan suuria ($> 2 \frac{g}{cm^3}$). Tämä voi johtaa eroihin USS-analyysien tuloksissa, kun sama mitaus analysoidaan kahdesti (tai useammin) käyttämällä toisistaan poikkeavia korkeus-tiheyskorjauksia.

7 Aktiivisuuksien vertailu

Analyysien tuloksia verrattiin toisiinsa myös laskettujen aktiivisuuksien osalta. Vertailu tehtiin kaavojen

$$\Delta_{A \rightarrow C}^{act} = \frac{A_C - A_A}{A_A} \quad (54)$$

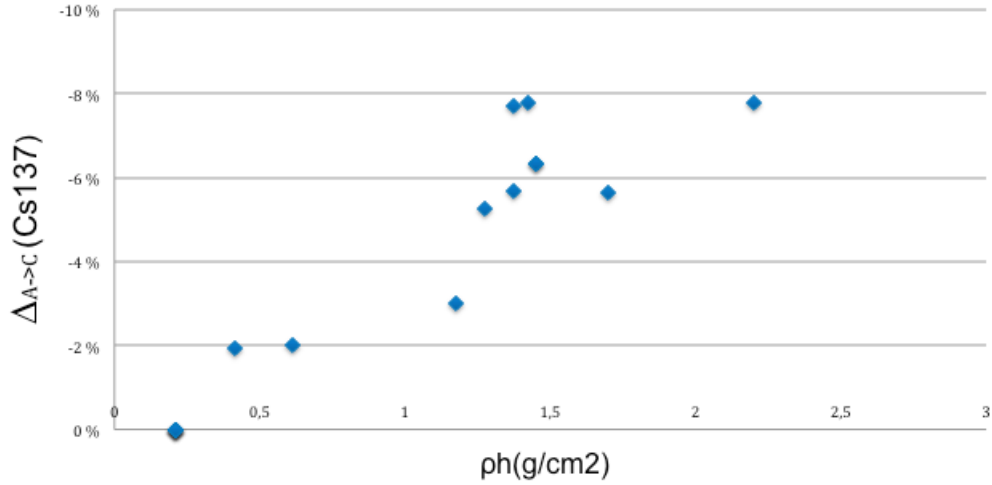
ja

$$\Delta_{B \rightarrow D}^{act} = \frac{A_D - A_B}{A_B} \quad (55)$$

mukaan. Tässä A_A ja A_C tapojen A ja C avulla määritetyt aktiivisuudet samalle nuklidille. Alaindeksi $A \rightarrow C$ tarkoittaa, että tapauksen A avulla suoritettu peruskalibrointi korvataan tapauksen C mukaisella EFFTRA-Nin kalibrointisiirrolla. Esim. W-purkissa olevalle näytteelle 12814E oli tehty USS-analyysi tapauksen A mukaisilla lähtötiedoilla. Samalle näytteelle tehtiin uusi USS-analyysi (Kuva 11, oik.) käyttämällä uutta Kalibraatio id:tä, joka saatiin Efftran-testauksessa tapauksen C mukaisilla lähtötiedoilla. Vastaavasti A_B ja A_D ovat samalle nuklidille määritetyt aktiivisuudet tapojen B ja D avulla.

$\Delta_{A \rightarrow C}^{act}$:t ja $\Delta_{B \rightarrow D}^{act}$:t laskettiin ^{40}K - ja ^{137}Cs -nuklideille. Kyseiset nuklidit ovat monoenergisiä, eli niillä ei tapahdu koincidenssia. ^{40}K emittoi kuitenkin 0,2 %:n intensiteetillä fotoneja, joiden energia on 511 keV [10]. Tästä aiheutuva piikki voi mennä gammaspektrissä päällekkäin annihilaatiopiikin kanssa, koska annihilaatiokvantin energia on käytännössä sama.

Poikkeamat lasketuissa aktiivisuuksissa on esitetty Kuvissa 16-19 graafisesti näytteen tiheyden ja korkeuden tulon ($\rho \cdot h$) funktiona. Tarkoitus oli selvittää, miten näytteen koostumus ja geometria vaikuttavat tapausten C ja D avulla



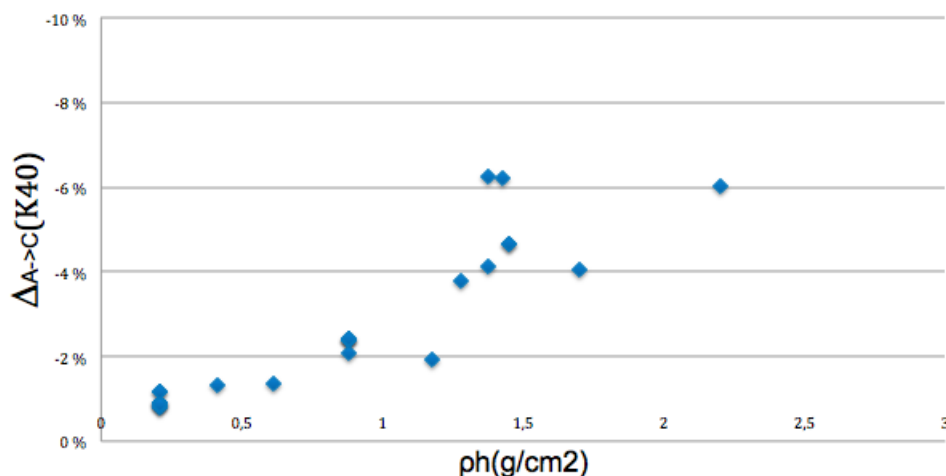
Kuva 16: ^{137}Cs -nuklidien $\Delta_{A \rightarrow C}^{act}$:n ρh :n funktiona.

laskettuihin piikkitehokkuuksiin ja sitä kautta nuklideille laskettuihin aktiivisuuksiin. Tulosten avulla yritettiin arvioida, miten lähellä USS:n ja EFFTRANin korkeus-tiheyskorjaukset ovat toisiaan, ja soveltuuko EFFTRANin korkeus-tiheyskorjaus STUKin gammalaboratoriossa mitattavien näytteiden analyysiin.

Kuvista 16-19 nähdään, että aktiivisuudet ^{137}Cs :lle ja ^{40}K :lle ovat EFFTRANin kalibrointisiirtojen avulla (tapauksen C ja D) laskettuina systemaattisesti pienempiä kuin samojen nuklidien aktiivisuudet peruskalibrointien (tapaukset A ja B) avulla laskettuina. ^{137}Cs :n $\Delta_{A \rightarrow C}^{act}$:t vaihtelevat välillä -8 % - 0 % (Kuva 16). ^{137}Cs :n $\Delta_{B \rightarrow D}^{act}$:n vaihtelu oli hieman suurempaa (Kuva 18).

W-purkeissa mitattujen näytteiden aktiivisuuspoikkeamat ($\Delta_{A \rightarrow C}^{act}$) ovat pienimmillään lasikuitusuodattimilla, joiden $\rho h = 0,27 \frac{\text{g}}{\text{cm}^2}$. ^{40}K :n $\Delta_{A \rightarrow C}^{act}$:t ovat hieman pienempiä kuin ^{137}Cs :n. Kuvien 17 ja 19 perusteella näyttää siltä, että ^{137}Cs :n ja ^{40}K :n $\Delta_{A \rightarrow C}^{act}$:t pysyvät itseisarvoltaan 10 %:n alapuolella, kun näytteen tiheyden ja korkeuden tulo on alle $2,5 \frac{\text{g}}{\text{cm}^2}$.

Aktiivisuuspoikkeamat T-purkkien näytteissä ($\Delta_{B \rightarrow D}^{act}$) eivät näytä selkeästi riippuvan ρh :sta näytteillä, joiden $\rho h < 1,5 \frac{\text{g}}{\text{cm}^2}$. Näillä ρh :n arvoilla $\Delta_{B \rightarrow D}^{act}$ vaihtelee välillä 0-6 %. Kun $\rho h > 1,5 \frac{\text{g}}{\text{cm}^2}$, $\Delta_{B \rightarrow D}^{act}$ näyttää pienenevän ρh :n funktiona. EFFTRANin kalibrointisiirtojen avulla lasketut aktiivisuudet (tapa D) ovat siis lähempänä peruskalibroinneilla (tapa B) saatuja tuloksia, kun näytteen tiheys on suuri.



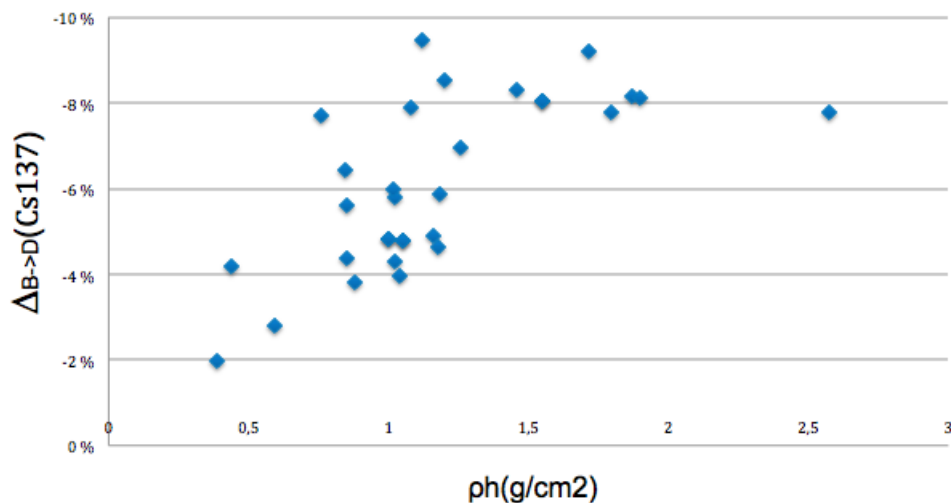
Kuva 17: ^{40}K -nuklidien $\Delta_{A \rightarrow C}^{act}$:n ρh :n funktiona.

8 Vertaaminen referenssilähteeseen

Tässä osiossa näytetään, että EFFTRANin kalibroitisiirtojen avulla saadaan oikeita tuloksia. Referenssilähteille (Taulukko 4) määritettiin aktiivisuuspitoisuudet tapauksissa A-H (poislukien C ja D). Tuloksia verrattiin oikeisiin aktiivisuuspitoisuuksiin, jotka löytyvät kyseisten näytteiden sertifikaateista. Analysoitavat referenssilähteet oli mitattu B6-ilmaisimella. Analyysit tehtiin uudelleen kolmelle vesinäytteelle, kahdelle kvartsihiekkänäytteelle ja neljälle lasikuitusuodattimelle. Tarvittavat referenssilähteiden tiedot löytyvät Taulukosta 4.

Näytteiden alkuainekoostumukset otettiin tässä vaiheessa huomioon. Analysoitavien nuklidien aktiivisuuspitoisuudet määritettiin LSQ-menetelmällä. Analysoitavissa referenssilähteissä (Taulukko 4) on pienienergiisiä nuklideja ($E_\gamma < 100 \text{ keV}$), joiden emittoimien fotonien piikkitehokkuudet riippuvat lähteen alkuainekoostumuksesta. Efftran-testauksissa käytettiin oletettuja alkuainekoostumuksia, jotka on esitetty Taulukossa 4. Näytteiden oletettiin koostuvan vain yhdestä alkuainekomponentista. Mahdolliset muiden alkuaineiden pitoisuudet ovat analysoitavissa referenssilähteissä niin pieniä, etteivät ne käytännössä vaikuta fotonien piikkitehokkuuteen yli 46,5 keV:in energioilla.

EFFTRANin kalibroitisiirroissa käytettiin referenssilähteiden analyyseissä X-kalibrointeja (tapaukset E-H). Tapausten F ja H avulla haluttiin testata, saadaanko EFFTRANin kalibroitisiirtojen avulla oikeita tuloksia, jos Efftran-testauksen mukaisella standardilla on eri geometria kuin mitattaval-



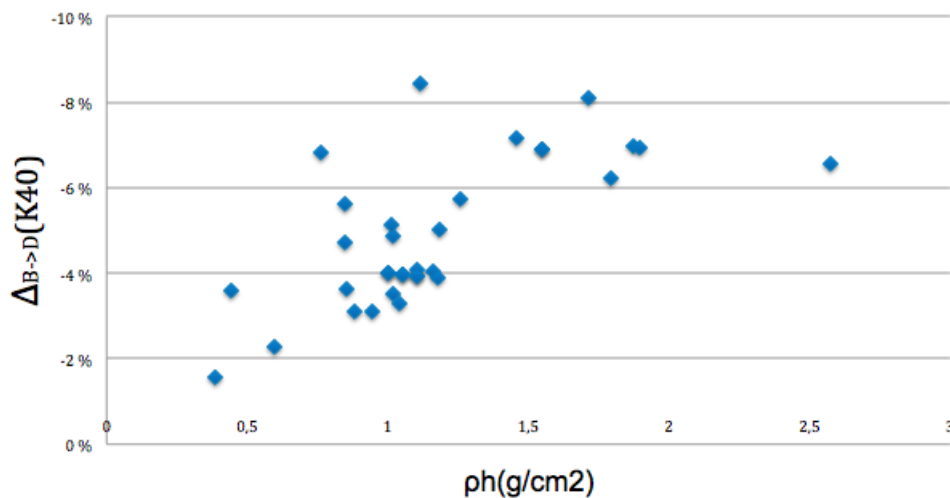
Kuva 18: ^{137}Cs -nuklidien $\Delta_{B \rightarrow D}^{act}$:n ρh :n funktiona.

la näytteellä. Näytepurkit W ja T poikkeavat toisistaan lähinnä halkaisijan osalta.

Analyysin ensimmäisessä vaiheessa näytteelle tehtiin Efftran-testaus, joka johdettiin peruskalibroinnista 500 tai 520 (Kuva 11, oik.). Saatiin uusi kalibraatio id, jota käytettiin lähetettäessä tulokset uudelleen analyysiin (Kuva 11, vas.). Tulokset tulivat NAMITin ylävalikon *Laatu*-kohtaan *Laadunvalvonta*-välilehden alle (Kuva 17). Ylärivillä näkyvät referenssilähteen aktiivisuuspitoisuudet ja alempana USS-analyysillä saadut aktiivisuuspitoisuudet ja niiden poikkeamat referenssin aktiivisuuspitoisuuksista. Uusimman analyysin tulokset tulevat aina ensimmäiselle riville.

Mikäli EFFTRAN suorittaa kalibroitisiirron oikein, sen avulla saadut aktiivisuuspitoisuudet vastaavat referenssin oikeita aktiivisuuspitoisuuksia, jotka ovat merkittyinä referenssien sertifikaatteihin. Analyysiä voidaan pitää onnistuneena, mikäli lasketut aktiivisuuspitoisuudet poikkeavat alle 5 % niiden todellisista arvoista. 5 - 10 %:n poikkeamat voidaan harkinnan varaisesti hyväksyä, mutta tällöin on syytä tarkistaa, että analyysi ja lähtökaliointi/kalibroitisiirto on tehty oikein.

Osalla analysoitavista nuklideista on pieniä fotopiikkejä, joita vastaava aktiivisuuspitoisuus on vain hieman yli havaitsemisrajan (MDA). Pienten fotopiikkien tunnistusten ja muotokaliointien on onnistuttava, jotta nuklidin aktiivisuuspitoisuus tulee lasketuksi oikein. Yleensä muotokaliointit onnistuvat automaattianalyysissä vain riittävän isoille fotopiikeille. Pienten foto-



Kuva 19: ^{40}K -nuklidien $\Delta_{B \rightarrow D}^{act}$:n funktiona.

piikkien alat tulevat helposti lasketuksi väärin, jos niiden muotokalibrointi ei ole onnistunut. Mitä pienempi fotopiikki on, sitä suurempi on sen suhteellinen tilastollinen epävarmuus. Mikäli analysoitava nuklidi emittoi pieniä fotopiikkejä, joita käytetään kyseisen nuklidin aktiivisuuden määrittämiseen, voidaan gammaspektrille joutua tekemään manuaalinen muotokalibrointi.

Namit	Tilaukset	Näytteet	Määrittelyt	Raportointi	Laatu	Ylläpito
Laadunvalvonta						
Kemikaalit						
Radionuklidit						
Kalibroinnit						
mixed T20 ▾ B6 ▾ kaikki ▾						
T-purkki T20			Pb-210 46.5 7791.0	Am-241 59.5 3962.0	Cd-109 88.0 10755.0	Co-57 122.1 242.0
09.10.17	1:17	6657	-15 0	3725	-6 0	9911 -8 0 230 -5 0
09.10.17	1:17	7075	-9 0	3915	-1 0	10163 -6 0 251 4 0
09.10.17	1:17	14312	84 0	7692	94 0	19411 80 0 439 81 0
09.10.17	1:17	7103	-9 0	3965	0 0	10348 -4 0 231 -4 0

Kuva 20: Vesinäytteen T20 aktiivisuuspitoisuudet NAMITin Laatu-osiossa. Ylimmällä rivillä näkyy referenssissä olevan nuklidin nimi (1) ja gammaenergia (2), sekä nuklidin aktiivisuuspitoisuus referenssissä (3). Alemmilla riveillä ovat USS-analyseillä lasketut aktiivisuuspitoisuudet (4) ja niiden poikkeamat (%) todellisista arvoista, jotka on merkitty kohtaan (3). Viimeisimmän analyysin tulokset näkyvät aina ylimmällä rivillä.

Analysoitavat nuklidit on esitetty Taulukossa 4. Nuklideilla ^{57}Co ja ^{60}Co on kaksi pääpiikkiä [10], joten niille lasketut aktiivisuuspitoisuudet riippuvat tehokkuuskalibrointien lisäksi myös tavasta määrittää c_{TCS} . ^{241}Am :lla on useita fotopiikkejä, mutta sen piikkien emissiotodennäköisyydet ovat pää-

Taulukko 4: Vertailuanalyyseissä käytettyjen referenssilähteiden tiedot. Kohdan "näyte" alla on referenssilähteen tunnus, jota käytetään NAMITissa.

Näyte	Geometria	Materiaali	Koostumus	Korkeus (mm)	Tiheys ($\frac{g}{cm^3}$)
9322Y	W	vesi	H ₂ O(100%)	19	1,06
9321X	T	vesi	H ₂ O(100%)	20	1,07
12550Ro	T	vesi	H ₂ O(100%)	26	0,99
7584D	W	kvartsihiekkä	SiO ₂ (100%)	11	1,26
7539A	T	kvartsihiekkä	SiO ₂ (100%)	26	1,61
1338T	T	lasikuitusuodatin	C ₃ F(100%)	18	0,6
1340W	T	lasikuitusuodatin	C ₃ F(100%)	20	0,6
1339U	W	lasikuitusuodatin	C ₃ F(100%)	5	0,6
13376Z	T	lasikuitusuodatin	C ₃ F(100%)	9	0,58

piikin ($E_\gamma=59,5$ keV) emissiotodennäköisyyttä lukuunottamatta pieniä. Siiten c_{TCS} -kerroin 59,5 keV:n fotonille on käytännössä 1. ^{54}Mn emittoi fotoneita vain yhdellä gammaenergialla ($E_\gamma=834,8$ keV), mutta koska ^{54}Mn :n fotoneilla tapahtuu summautumista sen röntgenfotonien kanssa [10], c_{TCS} -kertoimeksi 834,8 keV:n fotonille saadaan tehokkuuskalibroinnista riippuen noin 1,02. Muilla analysoitavilla nuklideilla ei tapahdu koincidenssia.

Taulukko 5: Analysoitavat nuklidit, niiden gammaenergiat, emissiotodennäköisyydet ja puoliintumisaajat.

Nuklidi	E[keV]	I_γ (%)	$T_{\frac{1}{2}}$ (d)
^{210}Pb	46,5	4,25	8120
^{241}Am	59,5	35,9	158000
^{109}Cd	88,0	3,61	246,1
^{57}Co	122,1	85,60	271,8
^{57}Co	136,0	10,68	271,8
^{113}Sn	391,7	64,0	115,09
^{137}Cs	661,7	85,1	10976
^{54}Mn	834,8	99,98	312,13
^{65}Zn	1115,5	50,60	244,01
^{60}Co	1773,2	99,97	1925,2
^{60}Co	1332,5	99,99	1925,2

Tavoilla A-H (poislukien C ja D) laskettuja referenssien aktiivisuuspitoisuuksia verrattiin oikeisiin referenssien aktiivisuuspitoisuuksiin kaavan

$$\Delta_{ref,X}^c = \frac{C_X - C_{ref}}{C_{ref}} \quad (56)$$

mukaan. Tässä C_{ref} on analysoitavan referenssin aktiivisuuspitoisuus ja C_X tavan X avulla (Taulukko 3, tavat A-B tai E-F) määritetty aktiivisuuspitoisuus samalle nuklidille. Referenssin aktiivisuuspitoisuutta C_{ref} voidaan pitää nuklidin oikeana - eli todellisena aktiivisuuspitoisuutena. Näytteelle tehty USS-analyysi on sitä onnistuneempi, mitä lähempänä nuklidille laskettu C_X on kyseisen nuklidin "oikeaa" aktiivisuuspitoisuutta (C_{ref}), eli mitä pienempi on $\Delta_{ref,X}^c$:n itseisarvo.

8.1 Vesinäyte W19

Vesinäytteelle 9322Y analysoidut aktiivisuuspitoisuudet (C_E ja C_F) täsmäsivät näytteen oikeiden aktiivisuuspitoisuuksien kanssa. Pienienergisten nuklidien (^{210}Pb , ^{241}Am ja ^{109}Cd) aktiivisuuspitoisuudet poikkesivat tavalla E laskettuina alle 5 % oikeista aktiivisuuspitoisuuksista. Kun analyysi tehtiin W19-näytteelle tapauksessa A, pienienergisille nuklideille ($E < 100$ keV) saadut aktiivisuuspitoisuudet olivat 6-12 % oikeita arvoja suurempia. ^{241}Am :n $\Delta_{ref,A}^c$ oli +12 %, mikä on merkittävästi suurempi kuin +4 %:n poikkeama tapauksessa E laskettuna. EFFTRANin suorittamat kalibrointisiirrot johtavat siis peruskalibrointeja parempiin tuloksiin pienienergisten nuklidien analysoinnissa, kun näytteen alkuainekoostumus otetaan kalibrointisiirrosta huomioon.

Taulukko 6: Vertailuanalyysin tulokset W19-vesinäytteellä

Nuklidi	E[keV]	C_{ref}	C_A	$\Delta_{ref,A}^c$	C_E	$\Delta_{ref,E}^c$	C_F	$\Delta_{ref,F}^c$
^{210}Pb	46,5	7791	8250	+6 %	7577	-3 %	7608	-2 %
^{241}Am	59,5	3962	8250	+12 %	4138	+4 %	4191	+6 %
^{109}Cd	88,0	10755	8250	+6 %	10599	-1 %	10791	0 %
^{57}Co	122,1	242	276,5	+14 %	280,7	+16 %		
^{57}Co	136,0	242	254,4	+5 %	248	+2 %		
^{113}Sn	391,7	139	156	+12 %	144	+4 %	151	9 %
^{137}Cs	661,7	4379	4635	+6 %	4280	-2 %	4513	3 %
^{54}Mn	834,8	1398	1486	+6 %	1414	+1 %	1424	2 %
^{65}Zn	1115,5	2145	2272	+6 %	2210	+3 %	2155	0 %
^{60}Co	1773,2	4046	4012	-1 %	4080	3 %		
^{60}Co	1332,5	4046	4012	-1 %	4099	4 %		

Analyysitulokset ^{57}Co :n aktiivisuuspitoisuudelle olivat tapauksissa A ja E laskettuina liian suuria (+14 % ja +16 %), kun aktiivisuuspitoisuus määritettiin 122,1 keV:n piikistä. ^{57}Co :n pääpiikkien (122,1 keV ja 136,47 keV) alat

olivat W19-näytteen mittaustuloksissa erisuuret. Tämän vuoksi ^{57}Co :n aktiivisuuspitoisuudet poikkesivat toisistaan LSQ- ja primääripiikkimenetelmillä laskettuina.

^{137}Cs :n ja ^{54}Mn :n aktiivisuuspitoisuudet laskettiin onnistuneesti tapauksessa E. ^{137}Cs :n aktiivisuuspitoisuus oli analyysin tuloksissa vain 2 % oikeaa aktiivisuuspitoisuutta pienempi. ^{54}Mn :lle laskettu aktiivisuuspitoisuus oli 1 % todellista suurempi. Poikkeamat ^{60}Co :lle saaduissa aktiivisuuspitoisuuksissa olivat pieniä verrattuna referenssin arvoihin, kun analyysi tehtiin tapauksessa E.

W19-referenssille tehtiin USS-analyysi myös käyttämällä tapausta F. Poikkeama ^{113}Sn :n aktiivisuuspitoisuudessa oli tällä tavoin laskettuna +9 %. ^{241}Am :n aktiivisuuspoikkeama (+6 %) oli F-tapauksessa laskettuna suurempi kuin tapauksessa E (+4 %), mutta pienempi kuin tapauksessa A. Muiden monoenergisten nuklidien aktiivisuuspitoisuudet olivat tapauksessa F laskettuna lähellä referenssin aktiivisuuspitoisuuksia. Tulokset olivat siis kokonaisuudessaan hyviä, kun kalibrintisiirto johdettiin EFFTRANin avulla W-geometrialle T0-standardin tehokkuuskäyrästä.

8.2 Vesinäyte T20

Vesinäytteelle 9321X lasketut aktiivisuuspitoisuudet vastasivat referenssiarvoja, kun analyyseissä käytettiin tapausta G. Tapauksessa G lasketuista analyysituloksista ^{210}Pb :n aktiivisuuspitoisuus poikkesi eniten referenssiarvosta ($\Delta_{ref,G}^{act} = +9\%$). Tulos oli kuitenkin lähempänä oikeaa arvoa, kuin tapauksessa B laskettuna aktiivisuuspitoisuus ^{210}Pb :lle ($\Delta_{ref,B}^{act} = -15\%$). Nuklideille ^{241}Am , ^{137}Cs ja ^{54}Mn analysoitiin vain 0-4 % todellista pienemmät aktiivisuuspitoisuudet, ja myös ^{60}Co :n fotopiikit analysoitiin onnistuneesti tapauksessa G.

Aktiivisuuspitoisuudet monoenergisille nuklideille olivat tapauksessa H laskettuina 1-9 % liian pieniä. Nuklidin ^{137}Cs aktiivisuuspoikkeama oli tapauksessa H laskettuna -7 %. Tulos oli selkeästi huonompi kuin ^{137}Cs :n aktiivisuuspitoisuudet tapauksissa B ja G. ^{210}Pb :n aktiivisuuspitoisuuksille saatiin tapausten G ja H avulla lähes samat arvot. Kalibrintisiirto W-geometriasta T:hen toimi siis 20 mm korkealla vesinäytteellä kohtalaisesti, mutta huominkin kuin tapaus G, jonka mukaisessa Efftran-testauksessa standardin ja näytteen geometriat ovat samat.

Taulukko 7: Vertailuanalyysien tulokset vesinäytteelle T20.

Nuklidi	E[keV]	C_{ref}	C_B	$\Delta_{ref,B}^c$	C_G	$\Delta_{ref,G}^c$	C_H	$\Delta_{ref,H}^c$
^{210}Pb	46,5	7791	6657	-15 %	7103	-9 %	7075	-9 %
^{241}Am	59,5	3962	3725	-6 %	3965	0 %	3915	-1 %
^{109}Cd	88,0	10755	9911	-8 %	10348	-4 %	10163	-6 %
^{57}Co	122,1	242	239,2	-1 %	235,6	-3 %		
^{113}Sn	391,7	139	133,3	-4 %	137,1	-1 %	130,4	-6 %
^{137}Cs	661,7	4379	4272	-2 %	4300	-2 %	4077	-7 %
^{54}Mn	834,8	1398	1368	-2 %	1346	-4 %	1336	-4 %
^{65}Zn	1115,5	2145	2159	+1 %	2072	-3 %	2125	-1 %
^{60}Co	1773,2	4046	3907	-3 %	4033	0 %		
^{60}Co	1332,5	4046	3951	-2 %	4078	1 %		

8.3 Merivesinäyte 12550Ro

EFFTRANin kalibrointisiirtojen avulla laskettiin aktiivisuuspitoisuudet IAEAn merivesinäytteelle (12550Ro) T-purkissa. Analysoitavat nuklidit olivat ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{133}Ba ja ^{60}Co . Näiden nuklidien fotopiikit ovat spektrissä pieniä, mikä kasvattaa epävarmuutta aktiivisuuspitoisuuksien määrittämiseen. Näytteen 12550Ro gammaspektreille tehtiin manuaalinen USS-analyysi, koska pienten piikkien muotokalibroinnit olivat epäonnistuneet tapauksen B mukaisissa USS:n automaattianalyysissä.

Analyysit tapauksessa B eivät tuottaneet toivottuja tuloksia kaikkien nuklidien osalta. ^{134}Cs :n aktiivisuuspitoisuus oli tapauksessa B laskettuna liian pieni ($\Delta_{ref,B}^{act} = -20$ %). Näin suuri poikkeama ei välttämättä riipu analyysiohjelman puutteista, vaan fotopiikin pienestä alasta, josta aiheutuva 10,3 %:n tilastollinen epävarmuus on tavallista suurempi. Nuklidin ^{133}Ba aktiivisuuspitoisuus oli tapauksessa B laskettuna 17 % liian pieni.

Taulukko 8: Vertailuanalyysien tulokset IAEAn merivesinäytteelle 12550Ro.

Nuklidi	C_{ref}	C_B	$\Delta_{ref,B}^c$	C_G	$\Delta_{ref,G}^c$
^{60}Co	339,5	377,4	+11 %	353,6	+4 %
^{134}Cs	312,0	250,6	-20 %	224,7	-28 %
^{137}Cs	259,3	263,5	+2 %	248,3	-4 %
^{133}Ba	248,5	206,9	-17 %	222,9	-10 %

Nuklidien ^{60}Co ja ^{137}Cs aktiivisuuspitoisuudet analysoitiin tapauksen G avulla onnistuneesti, sillä niiden poikkeamat oikeista arvoista olivat 4 % ja -4 %. Tapauksessa B laskettu aktiivisuuspitoisuus oli ^{60}Co :lle 11 % liian suuri.

^{137}Cs :lle laskettu aktiivisuuspitoisuus oli lähempänä referenssin aktiivisuuspitoisuutta ($\Delta_{ref,B}^{act} = +2\%$), kun käytettiin tapausta B. ^{134}Cs :n aktiivisuuspitoisuus poikkesi tapauksessa G laskettuna -28% oikeasta arvosta.

^{133}Ba :n aktiivisuuspitoisuudeksi saatiin tapauksen G avulla laskettua $222,9 \frac{\text{Bq}}{\text{g}}$. Tämä on 10% liian pieni, mutta lähempänä oikeaa arvoa kuin tapauksessa B saatu tulos samalle nuklidille. ^{133}Ba :n aktiivisuuspitoisuus määritettiin ^{133}Ba :n pääpiikistä, jonka energia on $356,0 \text{ keV}$. Kokonaisuutena näytteen 12550Ro tulokset poikkeavat referenssin arvoista merkittävästi sekä tapauksessa B että G laskettuina. Näytteessä 12550Ro olevien nuklidien aktiivisuuspitoisuudet ovat pieniä. Mittaukseen oltaisiin tarvittu enemmän aikaa, jotta analysoitavien nuklidien piikit olisivat olleet riittävän isoja ja tapausten B ja G toimivuutta näytteen 12550Ro USS-analyysiin oltaisiin voitu luotettavasti arvioida ja verrata toisiinsa.

8.4 Kvartsihiekkänäytteet 7583D ja 7539A

Efftran-testauksella tehtiin kalibroitisiirrot W- ja T-purkeissa oleville kvartsihiekkänäytteille (näytteet 7583D ja 7539A). Analyysissä tarkasteltiin ^{40}K :n ja ^{228}Ra :n aktiivisuuspitoisuuksia. ^{228}Ra on pitkäikäinen ($T_{\frac{1}{2}} = 5,75a$) radionuklidi, joka syntyy luonnon hajoamissarjassa (toriumsarja) [26]. ^{228}Ra :n aktiivisuus pysyy mittauksessa käytännössä vakiona, koska sen puoliintumisaika on mittausaikaan verrattuna pitkä. ^{228}Ra :n aktiivisuuspitoisuus laskettiin ^{228}Ac :n aktiivisuuspitoisuudesta. Koska ^{228}Ac :n puoliintumisaika on paljon lyhyempi kuin ^{228}Ra :n, ovat ^{228}Ra :n ja ^{228}Ac :n aktiivisuuspitoisuudet tasapainossa keskenään. Mitattavan kvartsihiekan alkuainekoostumus ja sen sisältämien radionuklidien aktiivisuuspitoisuudet tunnetaan tarkasti.

Taulukko 9: Vertailuanalyysien tulokset kvartsihiekkänäytteelle 7583D.

Nuklidi	E[keV]	C_{ref}	C_A	$\Delta_{ref,A}^c$	C_E	$\Delta_{ref,E}^c$	C_F	$\Delta_{ref,F}^c$
^{228}Ac	911	806	786,7	-2%	733,7	-9%		
^{40}K	1460	605	667,14	$+10\%$	623,6	$+3\%$	668,8	$+11\%$

^{40}K :n aktiivisuuspitoisuus näytteessä 7583D oli tapauksessa A laskettuna 10% oikeaa aktiivisuuspitoisuutta (C_{ref}) suurempi. Vastaava arvo oli lähimpänä referenssiarvoa, kun näyte 7583D analysoitiin tapauksen avulla ($\Delta_{ref,E}^c = +3\%$). Kun Efftran-testaus tehtiin 7583D:lle käyttäen tapausta F, ^{40}K :lle laskettu aktiivisuuspitoisuus oli selkeästi liian suuri ($\Delta_{ref,F}^c = +11\%$). USS-automaattianalyysit antoivat siis liian suuria aktiivisuuspitoisuuksia ^{40}K :lle sekä tapauksessa A, E että F. Nuklidille ^{228}Ac saatiin tapauksen E avulla

liian pieni aktiivisuuspitoisuus ($\Delta_{ref,E}^c = -9 \%$). EFFTRANin kalibrointisiirto toimi siis tapausta A huonommin ($\Delta_{ref,A}^c = -2 \%$) määrittäessä ^{228}Ra :n aktiivisuuspitoisuutta näytteessä 7583D.

Taulukko 10: Vertailuanalyysien tulokset kvartsihiekkänäytteelle 7539A.

Nuklidi	E[keV]	C_{ref}	C_B	$\Delta_{ref,B}^c$	C_G	$\Delta_{ref,G}^c$	C_H	$\Delta_{ref,H}^c$
^{228}Ac	911	806,0	830,2	+3 %			855,6	+6 %
^{40}K	1460	605	593,1	-2 %	544,9	-10 %	584,3	-3 %

^{40}K :n aktiivisuuspitoisuus T-purkin kvartsihiekkänäytteessä (7539A) oli tapauksen G avulla laskettuna todellista pienempi ($554,9 \frac{\text{Bq}}{\text{g}}$). ^{40}K :lle laskettu aktiivisuuspitoisuus täsmäsi paremmin oikean arvon kanssa, kun analyysi tehtiin tapauksen H avulla. Tämä oli lähes sama kuin tapauksen B avulla määritetty ^{40}K :n aktiivisuuspitoisuus.

^{228}Ac :n aktiivisuuspitoisuus näytteessä 7539A oli tapauksessa G laskettuna 6 % todellista suurempi. Piikkitehokkuudet 911 keV:n fotoneille olivat tapauksien B ja G avulla laskettuina lähes yhtä suuret. Erot ^{228}Ac :lle lasketuissa aktiivisuuspitoisuuksissa johtuivat osin c_{TCS} -kertoimien määrittämisestä. ^{228}Ac :n c_{TCS} -kertoimeksi laskettiin EFFTRANin avulla 1,07, kun taas USS:n automaattianalyysissä vastaava luku oli 1,04. TCS-kertoimien laskemiseen liittyy sitä suurempi epävarmuus, mitä enemmän analysoitavalla nuklidilla on gammaenergiatasoja. ^{228}Ac :lla on useita fotopiikkejä, joista kaikille ei ole tiedossa tarkkoja tuottonopeuksia.

8.5 Lasikuitusuodatin T9

Referenssilähteet 13376Z, 1338T, 1340W ja 1339U ovat lasikuitua, joka on puritusvaiheessa puristettu pieneen tilavuuteen [6]. Edellä mainitut näytteet ovat useita vuosia vanhoja. Niiden korkeus on todennäköisesti "kasvanut" ja tiheys näin ollen "pienentynyt" ajan kuluessa, sillä lasikuitusuodatin on pienimmässä tilavuudessaan vain hetken puristuksen jälkeen. Näytteille 13376Z, 1338T, 1340W ja 1339U merkittiin kuitenkin purituksessa niiden sertifikaattien mukaiset korkeudet ja tiheydet. Mitä pienempi on näytteen alkuperäinen korkeus, sitä suurempi vaikutus korkeuden muutoksella on piikkitehokkuuden epävarmuuteen.

Analyysit tehtiin tapauksien G ja H mukaisesti referenssilähteelle 13376Z, jonka korkeudeksi oli merkitty 9 mm. Nuklidien ^{210}Pb , ^{241}Am ja ^{109}Cd aktiivisuuspitoisuudet olivat tapauksessa B laskettuna yli 10 % todellista pienemmät. Tapauksien G ja H avulla saatiin parempia tuloksia, sillä edellä mainituille nuklideille lasketut aktiivisuuspitoisuudet olivat G- että H-tapauksilla

analysoituina -7 % - -3 %. Huonoin tulos oli ^{210}Pb :n aktiivisuuspitoisuudella ($\Delta_{ref,A}^c = -7\%$), mutta sekin oli lähempänä oikeaa arvoa kuin tapauksessa B saaduissa tuloksissa ($\Delta_{ref,A}^c = -15\%$). ^{241}Am :lle ja ^{109}Cd :lle saatiin lähes oikeat aktiivisuuspitoisuudet sekä tapauksessa G että H.

Taulukko 11: Vertailuanalyysit lasikuitusuodattimelle 13376Z.

Nuklidi	E[keV]	C_{ref}	C_B	$\Delta_{ref,B}^c$	C_G	$\Delta_{ref,G}^c$	C_H	$\Delta_{ref,H}^c$
^{210}Pb	46,5	593,2	505,0	-15 %	553,0	-7 %	551,0	-7 %
^{241}Am	59,5	384,7	348,0	-10 %	378,3	-2 %	374,0	-3 %
^{109}Cd	88,0	1587	1440	-10 %	1535	-3 %	1510	-5 %
^{57}Co	122,1	78,7	78,6	0 %	75,6	-4 %		
^{137}Cs	661,7	287,7	271,0	-6 %	279,5	-3 %	265,0	-8 %
^{54}Mn	834,8	283,8	284,0	0 %	283,1	0 %	281,0	-1 %
^{65}Zn	1115,5	584,0	619	+6 %	593,1	+2 %	608,0	+4 %
^{60}Co	1773,2	326,7	315,3	-3 %	319,5	-2 %		
^{60}Co	1332,5	326,7	311,2	-5 %	316,9	-3 %		

Tapaukset G ja H tuottivat hyviä analyysituloksia myös yli 100 keVin nuklideille näytteessä 13376Z. ^{137}Cs :lle lasketut aktiivisuuspitoisuudet olivat yli 5 % todellista pienemmät tapauksissa B ja H. Paras tulos ^{137}Cs :lle saatiin tapauksessa G. ^{54}Mn :n aktiivisuuspitoisuudet olivat tapauksesta riippumatta lähes oikeita. Tapauksessa G laskettiin onnistuneesti c_{TCS} -kertoimet ja aktiivisuuspitoisuudet ^{57}Co :lle ja ^{60}Co :lle. Näiden nuklidien $\Delta_{ref,G}^c$:t olivat noin -3 %.

8.6 Lasikuitusuodatin T18

Nuklidien aktiivisuuspitoisuudet näytteessä 1338T olivat tapauksesta riippumatta oikeita sekä pienillä - että suurilla energioilla. $\Delta_{ref,B}^c$:t olivat alle 5 % lähes kaikille analysoiduille referenssin 1338T nuklideille. Ainoastaan ^{54}Mn :n aktiivisuuspitoisuus ($267,0 \frac{\text{Bq}}{\text{l}}$) oli tapauksessa B laskettuna hieman tavallista suurempi (+6 %).

Poikkeamat pienienenergisisille (< 100 keV) nuklideille lasketuissa aktiivisuuspitoisuuksissa olivat lähes olemattomia tapauksilla G ja H laskettuina. Vain kolmen nuklidin $\Delta_{ref,X}^c$:t olivat näillä tavoilla laskettuina 5 %:n. ^{65}Zn :n aktiivisuuspitoisuus oli tapauksessa G laskettuna 6 % todellista pienempi. Suurin $\Delta_{ref,X}^c$ laskettiin 1332,5 keVin fotopiikille (+7 %) tapauksessa G.

Tapauksen H avulla saatiin hyviä tuloksia monoenergisisille nuklideille näytteessä 1338T. Ainoastaan ^{113}Sn :n aktiivisuuspitoisuus oli tapauksessa H las-

Taulukko 12: Vertailuanalyysien tulokset referenssille 1338T.

Nuklidi	E[keV]	C_{ref}	C_B	$\Delta_{ref,B}^c$	C_G	$\Delta_{ref,G}^c$	C_H	$\Delta_{ref,H}^c$
^{210}Pb	46,5	847	815,7	-4 %	850,0	0 %	846,6	0 %
^{241}Am	59,5	303,7	296,0	-3 %	308,4	+2 %	304,5	0 %
^{109}Cd	88,0	1443	1407	-2 %	1436	-1 %	1410	-2 %
^{57}Co	122,1	54	55,0	2 %	52,1	-4 %		
^{57}Co	136,8	54	53,9	0 %	54,2	0 %		
^{113}Sn	254,8	211,7	201,0	-5 %	205,1	-3 %	195,1	-8 %
^{137}Cs	661,7	271	278,2	+3 %	278,3	+3 %	263,8	-3 %
^{54}Mn	834,8	251,9	267,0	+6 %	260,6	+3 %	258,7	+3 %
^{65}Zn	1115,5	552	542,8	-2 %	516,3	-6 %	529,5	-4 %
^{60}Co	1773,2	294,7	300,9	2 %	306,6	+4 %		
^{60}Co	1332,5	294,7	309,7	5 %	315,3	7 %		

kettuna selkeästi liian pieni (-8 %). Siirto W-geometriasta T:hen toimi siis hyvin, kun Efftran-testaus tehtiin 18 mm korkealle lasikuitusuodatin-näytteelle T-purkissa.

8.7 Lasikuitusuodatin T20

Aktiivisuuspitoisuudet T20-referenssin (1340W) nuklideille täsmäsivät oikeiden arvojen kanssa, kun analyysit tehtiin tapausten B, G ja H avulla. $\Delta_{ref,X}^c$:t pienienenergisille nuklideille ($E < 100$ keV) olivat kaikissa tapauksissa (B, G ja H) laskettuina alle 5 %. Näytteen 1340W C_H :t olivat hieman suurempia kuin C_G :t.

Taulukko 13: Vertailuanalyysien tulokset referenssilähteelle 1340W

Nuklidi	E[keV]	C_{ref}	C_B	$\Delta_{ref,B}^c$	C_G	$\Delta_{ref,G}^c$	C_H	$\Delta_{ref,H}^c$
^{210}Pb	46,5	1206	1176,3	-2 %	1212	0 %	1218,5	+1 %
^{241}Am	59,5	212,3	213,7	+1 %	217,9	+3 %	220,7	+4 %
^{109}Cd	88,0	1060	1071	+1 %	1071	+1 %	1090	+3 %
^{57}Co	122,1	41,4	41,2	-1 %			38,7	-6 %
^{137}Cs	661,7	190,2	195,2	+3 %	183,9	-3 %	193,9	+2 %
^{54}Mn	834,8	189	183,3	-3 %	177,3	-6 %	178,7	-5 %
^{65}Zn	1115,5	407,0	442,3	+9 %	437,5	+7 %	426,2	+5 %
^{60}Co	1773,2	217,5	217,4	0 %			221,2	+2 %
^{60}Co	1332,5	217,5	217,2	0 %			221,1	+2 %

Näytteen 1340W $\Delta_{ref,X}^c$:t olivat pääosin pieniä myös yli 100 keV:n nuklideille. ^{54}Mn :n aktiivisuuspitoisuuksille saatiin tapausten G ja H avulla 6 ja 5 % liian pienet arvot. ^{65}Zn :lle analysoitiin 9 % todellista suurempi aktiivisuuspitoisuus käyttämällä tapausta B. Vastaava poikkeama oli hieman pienempi (+7 % ja +5 %) tapauksissa G ja H.

8.8 Lasikuitusuodatin W5

W5-referenssin (1339U) $\Delta_{ref,X}^c$:t olivat samaa suuruusluokkaa keskenään tapauksilla A, E ja F laskettuina. Nuklidin ^{65}Zn tuloksia lukuunottamatta $\Delta_{ref,A}^{act}$:t W5-referenssille olivat alle 6 %. Tulokset monoenergisten nuklidien aktiivisuuspitoisuuksille olivat suunnilleen yhtä lähellä oikeita arvoja, kun analyysit tehtiin tapauksissa E ja F. Nuklidien ^{109}Cd , ^{137}Cs ja ^{65}Zn $\Delta_{ref,A}^{act}$:t olivat F-tapauksessa laskettuna pienempiä kuin analyysissä, joissa käytettiin tapausta E.

Taulukko 14: Vertailuanalyysien tulokset referenssilähteessä 1339U

Nuklidi	E[keV]	C_{ref}	C_A	$\Delta_{ref,A}^c$	C_E	$\Delta_{ref,E}^{act}$	C_F	$\Delta_{ref,F}^{act}$
^{210}Pb	46,5	1135	1106	-3 %	1109	-2 %	1114	-2 %
^{241}Am	59,5	211,5	209,0	-1 %	210,0	-1 %	212,8	+1 %
^{109}Cd	88,0	1056	998,7	-5 %	997,5	-6 %	1016	-4 %
^{57}Co	122,1	41,3	42,2	+2 %	41,9	+2 %		
^{57}Co	136,8	41,4	43,7	+6 %	43,2	+4 %		
^{137}Cs	661,7	189,5	190,2	0 %	180,7	-5 %	190,6	+1 %
^{54}Mn	834,8	188,3	197,9	+5 %	188,4	0 %	189,9	+1 %
^{65}Zn	1115,5	406,0	464,8	+14 %	442,9	+9 %	431,5	+6 %
^{60}Co	1773,2	216,6	214,0	-1 %	208,9	-4 %		
^{60}Co	1332,5	216,6	221,8	+2 %	215,1	-1 %		

Tapausten A ja E avulla saadut tulokset olivat lähes samat W5-näytteen nuklideille. Ainoastaan ^{137}Cs :n ^{65}Zn :n $\Delta_{ref,X}^c$ olivat tavoilla A ja E laskettuina yli 5 %. Referenssi W5 on ominaisuuksiltaan lähellä 3 mm:n paksuista lasikuitusuodatinta. Kuten luvussa 5.2 todettiin, ovat ohuiden lasikuitusuodattimien nuklideille analysoidut tehokkuudet lähes samoja riippumatta siitä, tehdäänkö USS-analyysi tapauksen A vai C mukaisilla tiedoilla.

9 Näytteen alkuainekoostumus

Tässä osiossa tarkastellaan näytteen alkuainekoostumuksen merkitystä tapausten E ja G avulla laskettuihin radionuklidien aktiivisuuksiin, sekä lähtökaliointien 500 ja 520 soveltuvuutta ympäristönäytteiden USS-analyysien kalibrointisiirtoihin. Analyysit tehtiin uudelleen 30:lle T-purkissa - ja 20:lle W-purkissa mitatulle näytteelle ottamalla näytteen alkuainekoostumus huomioon Efftran-testauksessa.

Kaikki tässä luvussa analysoidut näytteet on mitattu B6-ilmaisimella. W- ja T-purkeille käytettiin Efftran-testauksessa tapausten E ja G mukaisia lähtötietoja. Nämä tapaukset tuottivat oikeita arvoja referenssilähteiden aktiivisuuspitoisuuksille luvun 8 analyyseissä. Tapauksissa E ja G saatuja aktiivisuuksia verrattiin tapauksilla A ja B aktiivisuuksiin. Poikkeama tapauksilla A ja E saatujen tulosten välillä laskettiin kaavalla

$$\Delta_{A \rightarrow E}^{act} = \frac{A_E - A_A}{A_A} \quad (57)$$

missä alaindeksit A ja E viittaavat sen tapauksen tunnukseen, jonka avulla kyseinen aktiivisuus laskettiin. Vastaavasti T-purkkien analyysitulosten aktiivisuuspoikkeamia tapauksilla B ja G laskettuna merkittiin:

$$\Delta_{B \rightarrow G}^{act} = \frac{A_G - A_B}{A_B} \quad (58)$$

Edellä kuvattuja vertailuja tehtiin ^{210}Pb :n, ^{137}Cs :n ja ^{40}K :n aktiivisuuksien osalta. Näitä nuklideja esiintyy suuressa osassa näytteitä, joita STUKin gammaspektrometreillä mitataan.

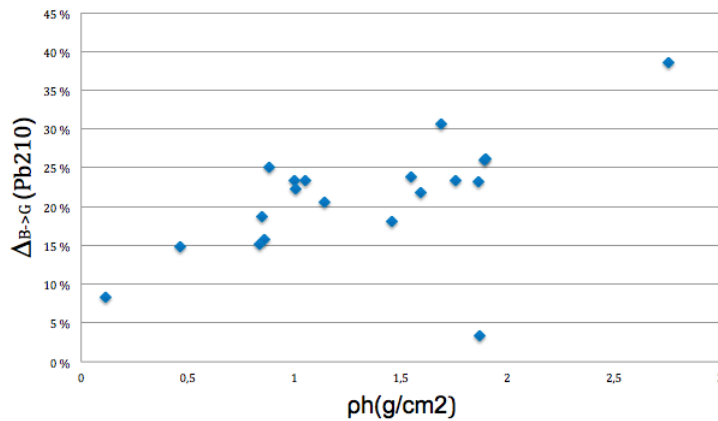
^{137}Cs ($E_\gamma=661,7$ keV) ja ^{40}K ($E_\gamma = 1460,8$ keV) emittoivat vain suurienergisiiä fotoneja. Niille lasketut aktiivisuudet eivät riipu merkittävästi väliaineen alkuainekoostumuksesta. ^{210}Pb :n fotonit ($E_\gamma=46,5$ keV) kuuluvat sen sijaan energia-alueeseen, jossa alkuainekoostumuksella on ratkaiseva merkitys fotonien piikkitehokkuuden - ja sitä kautta analysoitavalle nuklidille lasketun aktiivisuuden - kannalta. Koska USS ei huomioi näytteen alkuainekoostumusta, voivat samoille ^{210}Pb -nuklideille lasketut aktiivisuudet muuttua merkittävästi, kun tapaukset A ja B korvataan USS-analyyseissä tapauksilla E ja G.

Analysoiduille näytteille merkittiin viitteelliset alkuainekoostumukset Efftran-testauksessa. Oikeat alkuainekoostumukset ovat näytekohtaisia. Näytteiden alkuainekomponenttien massapitoisuudet tunnetaan vain tietyllä tarkkuudella. Esim. vesi- ja ilmanäytteiden koostumukset tunnetaan hyvin, kun taas maaperä- ja sedimenttinäytteiden koostumuksissa käytetään vain sopivia arvioita. Kaikkien tässä luvussa analysoitujen näytteiden referenssikoostumukset löytyvät liitteestä B.

9.1 ^{210}Pb

^{210}Pb :n aktiivisuudet analysoitiin vain T-purkkien näytteistä. Kuvasta 19 nähdään, että ^{210}Pb :n aktiivisuudet poikkeavat huomattavasti toisistaan tapauksissa B ja G laskettuina. Tapauksessa G lasketut ^{210}Pb :n aktiivisuudet ovat systemaattisesti suurempia kuin tapauksessa B saadut tulokset. $\Delta_{B \rightarrow G}^{act} : t$ ovat näytteestä riippuen muutamasta prosentista lähes 40 %:iin.

Poikkeamat $\Delta_{B \rightarrow G}^{act} (^{210}\text{Pb})$ riippuvat voimakkaasti näytteen tiheydestä ja korkeudesta (Kuva 19). $\Delta_{B \rightarrow G}^{act}$:n riippuvuus $h\rho$:sta ei ole täysin lineaarista, eli ^{210}Pb :n $\Delta_{B \rightarrow G}^{act}$:t voivat vaihdella myös $h\rho$:n ollessa lähes sama. Tulokset ilmentävät väliaineen alkuainekoostumuksen merkitystä piikkitehokkuuksien kannalta. Kun analysoitavan näytteen ominaisuudet poikkeavat selkeästi Efftran-testauksen mukaisesta standardista, voi EFFTRANin avulla tehty kalibrintisiirto johtaa virheellisen tuloksen.

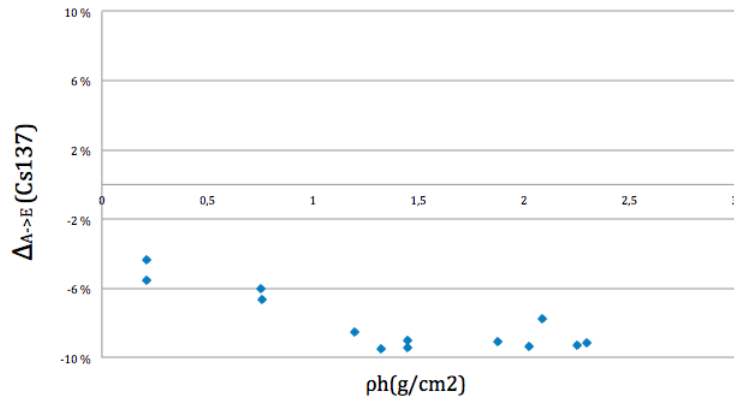


Kuva 21: ^{210}Pb :n aktiivisuuspoikkeamat T-purkeissa

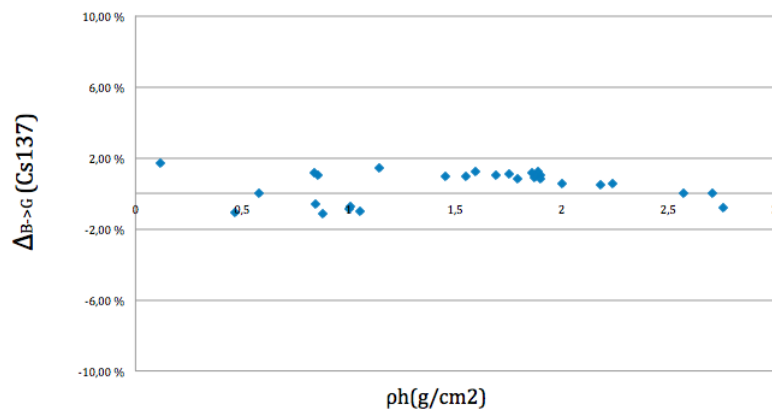
9.2 ^{137}Cs ja ^{40}K

Aktiivisuuspoikkeamat ^{137}Cs :lle ja ^{40}K :lle olivat W-purkeissa olevilla näytteillä suurempia kuin näytteille T-purkeissa. Käytettäessä W-purkeissa olevien näytteiden analyysissä tapausta E, olivat ^{137}Cs :lle ja ^{40}K :lle lasketut aktiivisuudet keskimäärin noin 8 % pienempiä kuin tuloksissa, jotka samoille näytteille saatiin tapausta A käyttäen.

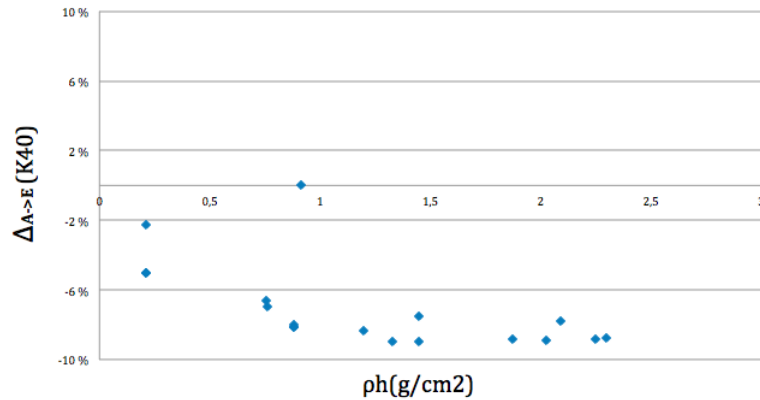
Erot ^{40}K -nuklidille lasketuissa aktiivisuuksissa selittyvät osittain kvartsihiekkanäytteen 7584D tuloksilla. Analyysit tapauksissa G ja H antoivat ^{40}K :lle pienemmän aktiivisuuspitoisuuden kuin analyysi samalle näytteelle tapauksessa B. Tapauksessa G laskettu ^{40}K :n aktiivisuuspitoisuus oli lähempänä referenssin aktiivisuuspitoisuutta kuin tulokset tapauksessa B.



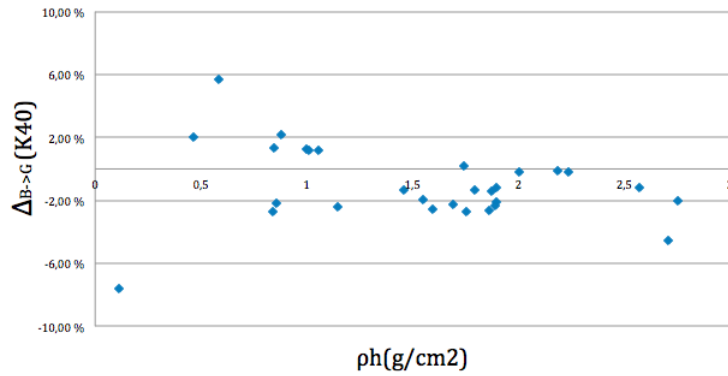
Kuva 22: ^{137}Cs :n aktiivisuuspoikkeamat W-purkeissa.



Kuva 23: ^{137}Cs :n aktiivisuuspoikkeamat T-purkeissa.



Kuva 24: ^{40}K :n aktiivisuuspoikkeamat W-purkeissa.



Kuva 25: ^{40}K :n aktiivisuuspoikkeamat T-purkeissa.

^{137}Cs :n aktiivisuudet T-purkkien näytteissä olivat B- ja G-tapauksissa laskettuina lähes samat. Erot niiden välillä olivat muutamaa poikkeusta lukuunottamatta alle 2 %. Tulos on yhtäpitävää luvun 9 kanssa, jossa saatiin referenssilähteiden ^{137}Cs -nuklideille (Taulukko 4) lähes samat aktiivisuudet B- ja G-tapauksissa.

^{40}K :n $\Delta_{B \rightarrow G}^{act}$:t olivat keskimäärin hieman suurempia kuin ^{137}Cs :n $\Delta_{B \rightarrow G}^{act}$:t. Ne jäivät kuitenkin useimpien analyysien tuloksissa alle 4 %:n. Luvun 9 perusteella tätä voitiin ennakoida, sillä kvartsihiekkänäytteen 7539A aktiivisuuksille saatiin lähes samat arvot B- ja G-tapauksissa. Kvartsihiekkänäytteitä lukuun ottamatta ei analysoiduissa referenssilähteissä ei ollut ^{40}K :ia. Luvun 9 perusteella ei siten voida sanoa, ovatko ^{40}K :n aktiivisuustulokset lähempänä oikeita arvoja B- vai G-tapausten mukaisissa analyysissä.

10 Johtopäätökset

Piikkitehokkuudet olivat systemaattisesti suurempia lähes kaikille fotoneille, kun peruskalibroinnit korvattiin EFFTRANin kalibroitisiirroilla. Tehokkuuserot $\Delta_{A,C}^{eff}$ ja $\Delta_{B,D}^{eff}$ pysyivät rajallisina ja pienenivät energian kasvaessa. Piikkitehokkuudet EFFTRANin kalibroitisiirtojen (tapaukset C ja D) ja peruskalibrointien (tapaukset A ja B) avulla laskettuina ovat lähimpänä toisiinsa lasikuitusuodatin-näytteillä, joiden korkeudet ovat 3 mm. Tämä selittyy osin sillä, että tapausten A ja B mukaisissa lähtökaliroinneissa käytetään standardia, jonka koostumus on lähes sama kuin lasikuidulla. Tehokkuuserot ovat suurimmillaan näytteillä, joilla on suuri täyttöaste. Näihin lukeutuvat esimerkiksi jotkut sedimentti- ja maaperänäytteet, joita mitataan pääosin T-purkeissa.

Tapauksissa C ja D lasketut aktiivisuudet W- ja T-purkkien näytteille ovat systemaattisesti pienempiä lähes kaikille nuklideille, kun verrataan niitä tapauksissa A ja B saatuihin aktiivisuuksiin samoille nuklideille. Suurimmat havaitut aktiivisuuspoikkeamat luvussa 9 olivat itseisarvoltaan hieman alle 8 %.

Työssä suoritettujen analyysien perusteella EFFTRANin kalibroitisiirrot toimivat peruskalibrointeja paremmin tai yhtä hyvin, kun lasketaan aktiivisuuspitoisuuksia pienenergisille (< 100 keV) nuklideille. Kun analyysit tehtiin EFFTRANin kalibroitisiirtojen avulla uudelleen yhdeksälle referenssille (luku 8), vain yksi nuklidille laskettu aktiivisuuspitoisuus poikkesi sen referenssiarvosta yli kymmenen prosenttia (Taulukko 6). Vastaavat poikkeamat olivat tapausten A ja B avulla laskettuina 0-15 %. Näytteen alkuainekoostumuksen huomioiminen Efftran-testauksessa antoi siis parempia tuloksia pienenergistien nuklidien aktiivisuuspitoisuuksille verrattuna vanhaan laskentatapaan, jossa alkuainekoostumusta ei huomioida USS-analyysin lähtökaliroinnissa.

Tulokset referenssilähteiden aktiivisuuspitoisuuksissa (luku 8) osoittavat, että EFFTRANin kalibroitisiirrot toimivat USS-analyyseissä hyvin, kun Efftran-testauksen mukaisella standardilla ja mitattavalla näytteellä on sama geometria. EFFTRANin kalibroitisiirrot tuottivat oikeita tuloksia myös useissa tapauksissa, joissa Efftran-testauksessa käytettävän standardin geometria oli eri kuin analysoitavalla näytteellä (tapaukset F ja H).

Kalibroitisiirrot EFFTRANilla voivat tuottaa virheellisiä aktiivisuustuloksia nuklideille, joilla tapahtuu merkittävästi summautumista tai fotopiikkien päällekkäisyyttä. Esimerkiksi ^{133}Ba :n aktiivisuuspitoisuuden laskeminen vesinäytteessä 12550Ro oli vaikeaa sekä peruskalibroinnin (tapaus B) - että

EFFTRANin kalibroitisiirron avulla (tapaus G). Kun analysoidaan nuklideja, joilla on useita fotopiikkejä, tai niiden fotopiikit ovat pieniä, analyysien tulokset samalle näytteelle voivat poiketa huomattavasti toisistaan eri tavoilla laskettuina.

Aktiivisuuspitoisuudet kvartsihiekkänäytteiden (7539A ja 7584D) ^{40}K - ja ^{228}Ra -nuklideille poikkesivat todellisista aktiivisuuspitoisuuksista 5-10 %, kun analyysit tehtiin EFFTRANin kalibroitisiirtoja käyttäen. Jos näytteen geometria ja ominaisuudet poikkeavat selkeästi standardista, jota käytetään kalibroitisiirroissa, kannattaa Efftran-testauksessa käyttää standardia, jolla on sama geometria kuin mitattavalla näytteellä.

Pienien energisten nuklidien analyysituloksia on vaikeaa arvioida sellaisten näytteiden kohdalla, joiden alkuainekoostumusta ei tunneta. Kun T-purkkien näytteitä analysoitiin tapauksessa G, poikkeavat ^{210}Pb :lle lasketut aktiivisuudet huomattavasti toisistaan verrattuna tapauksessa B saatuihin tuloksiin. ^{210}Pb :lle lasketut aktiivisuuspoikkeamat riippuvat voimakkaasti näytteen korkeudesta ja geometriasta (Kuva 21). Luvussa 9 todettiin, että mitä suurempi on näytteen $h\rho$, sitä suurempi on tapauksessa G laskettu ^{210}Pb :n aktiivisuus suhteessa peruskalibroinnin (tapaus B) avulla laskettuun ^{210}Pb :n aktiivisuuteen. Tämä tuo esille paitsi alkuainekoostumuksen merkityksen, myös eroavaisuudet EFFTRANin ja UniSAMPO-Shamanin korkeus-tiheyskorjauksissa. Efftran-testausta täytyy vielä käyttää useissa USS-analyyseissä ennen kuin voidaan varmasti osoittaa, että EFFTRAN laskee piikkitehokkuudet oikein pienien energisten nuklideille. Mikäli tämä pystytään osoittamaan, on ^{210}Pb :n aktiivisuuksille odotettavissa tarkempia tuloksia, kun EFFTRANin kalibroitisiirrot otetaan USS-analyyseissä käyttöön.

EFFTRANilla tehdyt kalibroitisiirrot toimivat suurelle osalle ympäristönäytteistä, joita STUKin gammalaboratorion BEGe-kiteillä mitataan. EFFTRANia voitaisiin jatkossa käyttää USS-automaattianalyyseissä peruskalibrointien rinnalla. On kuitenkin näytetyyppejä, joiden analysointi ei välttämättä tuota oikeita tuloksia EFFTRANin kalibroitisiirtoja käyttäen. Näitä ovat esim. rakennusmateriaalit ja luokittelemattomat näytteet, sekä muut kiviainesta tai metallia sisältävät näytteet, joiden alkuainekoostumusta ei tunneta tai joiden tiheys ja korkeus ovat muihin ympäristönäytteisiin verrattuna poikkeuksellisen suuria. Analyysitulokset korkeille ja tiheille näytteille toivat esille EFFTRANin rajoitteita, kun analysoitavan näytteen koostumus ja geometria poikkesivat merkittävästi Efftran-testauksessa käytettävästä standardista.

Tässä työssä analysoitiin vain rajallinen määrä näytteitä, ja kaikki analysoidut referenssilähteet (luku 8) oli mitattu samalla ilmaisimella (B6). EFFT-

RANin voidaan odottaa soveltuvan myös muilla BEGe-kiteillä mitattujen näytteiden USS-analyyseiin, sillä STUKissa käytettävät BeGe-kiteet ovat rakenteiltaan samankaltaisia. EFFTRANia voitaisiin jatkossa soveltaa erityisesti sellaisten nuklidien analysointiin, joilla on useita fotopiikkejä ja joiden piikkien tuottonopeudet ovat pieniä tai huonosti tunnettuja.

Pääosalla tässä työssä analysoiduista nuklideista on vain yksi tai kaksi pääpiikkiä, joiden tuottonopeudet ovat hyvin tunnettuja ja joiden tilastolliset epävarmuudet ovat pieniä. Useita gammaenergioita emittoivien nuklidien (esim. ^{133}Ba :n) analysointi on vaikeaa riippumatta siitä, käytetäänkö analyysissä peruskalibrointeja (tapaukset A ja B) vain EFFTRANin kalibroitisiirtoja (tapaukset C-H). Jatkossa kannattaisi kokeilla, miten EFFTRANilla lasketut c_{TCS} -kertoimet soveltuvat aktiivisuuksien määrittämiseen. EFFTRAN ottaa c_{TCS} :n laskemisessa röntgenkoinzensenssin huomioon, mikä voi parantaa tuloksia USS:n TCS-laskentaan verrattuna.

Viitteet

- [1] J. Tikkanen. Calibration of a small anode germanium well detector. Pro gradu -tutkielma, Jyväskylän yliopisto, 2017.
- [2] T. Ikäheimonen (toim.), Säteily ja sen havaitseminen. Säteily- ja ydinturvallisuus -kirjasarja, STUK. Hämeenlinna. Karisto Oy:n kirjapaino, 2002.
- [3] A. El-Khatib, M. Badawi, M. Elzaher, A. Thabet. A study of the validity of the efficiency transfer method to calculate the peak efficiency using γ -ray detectors at extremely large distances. *Springer: Journal of Theoretical and Applied Physics*, 8: 120, 2014.
- [4] T. Vidmar, G. Kanish, G. Vidmar. Calculation of true coincidence summing corrections for extended sources with EFFTRAN. *Applied Radiation and Isotopes*, 69: 908–911, 2011.
- [5] S. Kaminski, A. Jakobi, C. Wilhelm. Uncertainty of gamma-ray spectrometry measurement of environmental samples due to uncertainties in matrix composition, density and sample geometry. *Elsevier: Applied Radiation and Isotopes*, 94: 306–313, 2014.
- [6] Keskustelut Roy Pölläsen kanssa
- [7] G. Knoll. *Radiation Detection and Measurement*. John Wiley and Sons, Inc., 4th edition, 2010.
- [8] M. Lépy, Detection efficiency. Laboratoire National Henri Becquerel, IAEA - ALMERA Technical Visit, July 2010, <https://studylib.net/doc/18208188/full-energy-peak-efficiency>. Haettu 13.11. 2019.
- [9] W. Chehade. True Coincidence Summing Correction in Gamma Spectroscopy, http://www.iup.uni-bremen.de/PEP_master_thesis/thesis_2007/thesis_chehade.pdf, 2007.
- [10] Laboratoire National Henri Bequerel. <http://www.lnhb.fr/nuclear-data/nuclear-data-table/>. Haettu 13.11. 2019.

- [11] G. Haquin. Coincidence Summing Corrections in Gamma-ray Spectrometry: Overview and Experimental Data. Radiation Safety Division, Soreq Nuclear Research Centre, Yavne 81800, <https://www.osti.gov/etdeweb/servlets/purl/20493919>, 2004.
- [12] P. Aarnio, J. Ala-Heikkilä, T. Hakulinen. SHAMAN - Expert System for Radionuclide Identification, User's Guide, Version 1.9, 2018.
- [13] P. Jodłowski. Self-absorption correction in gamma-ray spectrometry of environmental samples – an overview of methods and correction values obtained for the selected geometries. *Nukleonika*, 51: 21-25, 2006.
- [14] Y. Ağuş. Gamma-ray spectrometry for linear attenuation coefficients and self-attenuation correction factors of the skimmed milk powder. *Sakarya University Journal of Science*, 21(3): 426-430, 2017.
- [15] G. Joel, S. Penabeic, M. Ndontchuengb, G. Chenea, E. Mekontsob, A. Ebongueb, M. Ousmanoub, D. Strivay. Precision measurement of radioactivity in gamma-rays spectrometry using two HPGe detectors (BEGe-6530 and QC0818-7600SL models) comparison techniques: Application to the soil measurement. *Elsevier, MethodsX*, 4: 42–54, 2017. Published online 2016 Dec 31. doi: 10.1016/j.mex.2016.12.003.
- [16] N. Cutshall, I. Larsen, C. Olsen, Direct analysis of Pb-210 in sediment samples: a self-absorption corrections. *Nuclear Instrument Methods in Physics Research*, 206: 309312, 1983.
- [17] L. Moens, O. De Donder, L. Xi-lei, F. Corte, A. De Wispelare, A. Simonits, J. Hoste. Calculation of the absolute peak efficiency of gamma-ray detectors for different counting geometries. *Nuclear Instruments and Methods*, 187: 451-472, 1981.
- [18] J. Nikolić, M. Rajačić, D. Todorović, M. Janković, N. Sarap, G. Pantelić, I. Vukanac. Semiempirical Efficiency Calibration in Semiconductor HPGe Gamma-Ray Spectroscopy. *Journal of Spectroscopy*, vol. 2018, Article ID 5392658, 8 pages, 2018. <https://doi.org/10.1155/2018/5392658>.
- [19] EFFTRAN [tietokoneohjelma], <http://www.ffftran.com/>, Haettu 13.11. 2019.
- [20] Nucleonica [verkkosivusto], Help: Coincidence Summing Corrections++, https://www.nucleonica.com/wiki/index.php?title=Help%3ACoincidence_Summing_Corrections%2B%2B, Haettu 13.11. 2019.

- [21] J. Nikolić, T. Vidmar, D. Joković, M. Rajačić, D. Todorović. Calculation of HPGe efficiency for environmental samples: comparison of EFFTRAN and GEANT4. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 763: 347–353, 2014.
- [22] N. Kiiskinen. Laboratorion sisäilman radonpitoisuuden vaikutukset gammaspektrometrisiin mittauksiin. Erikoistyö, STUK.
https://www.julkari.fi/bitstream/handle/10024/135421/Erikoisty%C3%B6_Niko_Kiiskinen.pdf?sequence=1, 2017.
- [23] S. Rafiq, N. Huma, I. Pasha, A. Sameen, O. Mukhtar, M. Khan. Chemical Composition, Nitrogen Fractions and Amino Acids Profile of Milk from Different Animal Species. *Asian-Australasian Journal of Animal Sciences*, 29(7): 1022–1028, 2016.
- [24] D. Orth. Studies of the efficiency calculations for milk samples using the EFFTRAN software, STUK. Helsinki, 2018.
- [25] Mittausepävarmuus *SFS-Käsikirja 40*, Suomen Standardoimisliitto, Helsinki, 2013.
- [26] Roy Pöllänen (toim.), Säteily ympäristössä. *Säteily- ja ydinturvallisuus -kirjasarja*, STUK. Hämeenlinna. Karisto Oy:n kirjapaino, 2003.
- [27] S. Souci, W. Fachmann, H. Kraut. Food Composition and Nutrition Tables, 5th ed. *Wissenschaftlicher Verlagsgesellschaft, Stuttgart*, 1994.
- [28] J. Skalny. Instructional modules in cement science. *Cement and Concrete Research*, 15: 1087-1088, 1985.
- [29] R. Murty. Effective Atomic Numbers of Heterogenous Materials. *Nature*, 207: 398-399, 1965.

Liite A Ilmaisimien ominaisuudet

Tähän liitteeseen on koottu tietoja luvun 5.1 Efftran-testauksissa käytettyjen ilmaisimien ominaisuuksista. Ilmaisimien korkeudet ja halkaisijat kopioitiin ilmaisimien dokumenteista. Muille ilmaisimen ominaisuuksille annettiin samat arvot kuin B6-ilmaisimella, koska niistä ei ollut saatavilla tarkempaa tietoa. Oletuksena on, että Taulukon 14 BEGe-kiteiden dimensiot ovat suunnilleen samoja niiden suureiden osalta, joita ei ole dokumentoitu. Mikäli ilmaisimen dimensioista löytyy tietoja, jotka poikkeavat Taulukon 14 mukaisista arvoista, ne kannattaa päivittää ilmaisimen txt-tiedostoon NAMIT-palvelimella ennen Efftran-testausta.

Taulukko 15: Ilmaisimien ominaisuudet Efftran-testauksessa.

Ilmaisimen ominaisuus	B3	B4	B5	B7	FX1
halkaisija	80,0 mm	80,0 mm	80,0 mm	90,5 mm	85,0 mm
korkeus	30,0 mm	31,5 mm	30,0 mm	30,0 mm	30,0 mm
pyöristymä	0 mm	0 mm	0 mm	0 mm	
ylempi kuollut kerros	1,5 mm	1,5 mm	1,5 mm	1,5 mm	1,5 mm
sivun kuollut kerros	3,0 mm	3,0 mm	3,0 mm	3,0 mm	3,0 mm
onkalon pituus					
ilmaisimen materiaali	Ge	Ge	Ge	Ge	Ge
pidikkeen paksuus	2,0 mm	2,0 mm	2,0 mm	2,0 mm	2,0 mm
pidikkeen materiaali	Al	Al	Al	Al	Al

Liite B Alkuainekoostumuksia

Taulukoissa 15-17 on keskeisimpien näyteluokkien alkuainekoostumuksia virhearvioineen. Koostumusten arvioinnissa on käytetty apuna eri julkaisujen kirjallisuusarvoja [5, 24, 23, 27, 28]. Alkuaineiden pitoisuudet on ilmoitettu massaprosentteina. Massapitoisuuksia on jonkin verran pyöristetty. Taulukosta on jätetty pois alkuaineita, joiden pitoisuudet ovat niin pieniä, ettei niillä ole käytännön merkitystä piikkitehokkuuden kannalta. Jokaisella alkuainekomponentille arvioitiin vaihteluvälit. Näytteille annettuja viitteellisiä referenssikoostumuksia (esim. maito) käytettiin Efftran-testauksissa.

Useimpien STUKissa mitattavien ympäristönäytteiden alkuainekoostumuksissa esiintyy vaihtelua. Arvioitaessa kyseisen vaihtelun vaikutusta nuklideille laskettujen aktiivisuuksien kokonaispävarmuuteen, täytyy Efftran-testauksissa käyttää koostumuksia, joissa alkuaineiden pitoisuuksille on annettu suurimpia ja pienimpiä arvoja vaihteluvälien rajoissa. "Näyte1" (esim. maito1) viittaa koostumukseen, jossa käytetään suurinta mahdollista arvoa niille näytemateriaalin alkuainekomponenteille, joiden atomiluvut ovat keskimääräistä pienempiä (esim. O ; $Z = 8$). Vastaavasti niille alkuaineille annetaan pienimmät mahdolliset pitoisuudet, joilla on keskimääräistä suurempi atomiluku (esim. Fe ; $Z = 26$). "Näytteessä 2" (esim. maito2) on puolestaan annettu pienimmät mahdolliset pitoisuudet näytemateriaalin alkuaineille, joiden massaluku on keskimääräistä pienempi, ja niille alkuaineille on annettu suurimmat pitoisuudet, joilla on keskimääräistä suurempi massaluku. Molekyyleille atomilukujen tilalla käytetään efektiivisiä atomilukuja, jotka lasketaan kaavalla [29, s. 398-399]:

$$Z_{eff} = \sqrt[2,94]{\sum_{n=i}^N f_i Z_i^{2,94}} \quad (59)$$

Tässä Z_i on i :nnen alkuainekomponentin atomiluku ja f_i kyseisen alkuaineen elektroniluvun osuus elektronien kokonaismäärästä molekyylille, jonka efektiivistä massalukua lasketaan. Esim. veden (H_2O) efektiivinen atomiluku on

$$Z_{eff} = \sqrt[2,94]{\frac{2}{10} \cdot 1^{2,94} + \frac{8}{10} \cdot 8^{2,94}} \approx 7,42 \quad (60)$$

missä 2 ja 8 ovat H_2 :n ja O :n elektroniluvut, sekä 10 elektronien kokonaismäärä H_2O :ssa. 1 ja 8 ovat atomilukuja H :lle ja O :lle.

Taulukko 16: Yleisimpien gammalaboratoriossa mitattavien ympäristönäytteiden alkuainekoostumuksia.

näyte	<i>Ca</i>	<i>K</i>	<i>Cl</i>	<i>P</i>	<i>Mg</i>	<i>Na</i>	<i>O</i>	<i>NO₃</i>	lähde
maito	16,2 %	21,2 %	13,8 %	12,4 %	1,6 %	6,5 %	28,3 %		[5, 27]
maito1	11,2 %	16,2 %	8,8 %	12,4 %	6,6 %	11,5 %	33,3 %		
maito2	21,2 %	26,2 %	18,8 %	12,4 %			21,4 %		
vilja	3,0 %	24,0 %	2,0 %	18,0 %	7,0 %		45,0 %		[24, 5]
vilja1	1,0 %	21,0 %		20,0 %	9,0 %		49,0 %		
vilja2	5,0 %	27,0 %	4,0 %	16,0 %	5,0 %		41,0 %		
juures	4,0 %	36,0 %	6,0 %	5,0 %	3,0 %	3,0 %	38,0 %	5,0 %	[5, 27]
juures1	10,0 %	42,0 %	8,0 %	10,0 %			30,0 %		
juures2		30,0 %	2,0 %			8 %	50,0 %	10,0 %	
kala	2,0 %	28,0 %	8,0 %	17,0 %	2,0 %	6,0 %	37,0 %		[5, 27]
kala1	4,0 %	33,0 %	16,0 %	20,0 %			27,0 %		
kala2		23,0 %		15,0 %	4,0 %	11,0 %	47,0 %		
vihannes	4,0 %	36,0 %	5,0 %	4,0 %	2,0 %	2,0 %	32,0 %	13,0 %	[5, 27]
vihannes1	10,0 %	50,0 %	10,0 %	10,0 %			20,0 %		
vihannes2		20,0 %					48,0 %	32,0 %	
liha	4,0 %	37,0 %	6,0 %	5,0 %	3,0 %	3,0 %	39,0 %	5 %	[5, 27]
liha1	10,0 %	42,0 %	8,0 %	10,0 %			30,0 %		
liha2		30,0 %	2,0 %			8,0 %	50,0 %	10,0 %	

Taulukko 17: Maaperä- ja sedimentinäytteiden viitteelliset alkuainekoostumukset.

näyte	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	MgO	CaO	Na_2O	CO_2	TiO_2	K_2O	C	Fe	lähde
maaperä	53,0 %	16,0 %	9,0 %	2,0 %	5,0 %	1,0 %	2,0 %	2,0 %	2,0 %	10,0 %		[5, 24]
maaperä1	25,0 %	10,0 %	30,0 %		20,0 %			10,0 %		5,0 %		
maaperä2	38,0 %	30,0 %		4,0 %		4,0 %	4,0 %			20,0 %		
sedimentti	65,0 %	20,0 %	8,0 %		7,0 %							
sedimentti1	60,0 %	15,0 %	13,0 %		12,0 %							
sedimentti2	70,0 %	25,0 %		3,0 %		2,0 %						

Taulukko 18: Muiden näytteiden alkuainekoostumuksia, joille ei ole arvioitu vaihteluvälejä.

näyte	materiaali	lähde
lasikuitusuodatin	C_3F : 100 %	
aktiivihiilisuodatin	C : 100 %	
carbonepoxy	C_3H_3N : 100 %	
betoni	Ca_3SiO_5 : 50,0 %, Ca_2SiO_4 : 25,0 % $Ca_3Al_2O_6$: 10 % $Ca_4Al_2Fe_2O_{10}$: 10,0 %, $CaSO_6H_4$: 5,0 %	[28]
sieni	$C_{18}H_{32}O_{16}$: 100 %	
levä	C : 50,0 %, O : 30,0 %, N : 10,0 %, H : 10,0 %	
marja		
vesi	H_2O : 97,0 %, Cl : 2,0 %, Na : 1,0 %	

Liite C Luvun 9 analyysien tulokset

Tähän liitteeseen on koottu tulokset luvun 9 analyyseistä. Analyysitulokset eri lähtökalibroinneilla saatuina on lueteltu tarkasteltaville nuklideille erikseen W- ja T-geometrioissa. Taulukoiden ensimmäisessä sarakkeessa on näytteen "NAMIT-koodi" (esim. 11465Z), eli tunnus, joka merkitään näytteelle purkitusvaiheessa.

Taulukko 19: $\Delta_{A \rightarrow E}^{act}({}^{40}\text{K})$ W-purkissa luvun 9 analyysien tuloksissa.

Näyte	$h(\text{cm})$	$\rho(\frac{\text{g}}{\text{cm}^3})$	$\rho \cdot h (\frac{\text{g}}{\text{cm}^2})$	$A({}^{40}\text{K})_A$	$A({}^{40}\text{K})_E$	$\Delta_{A \rightarrow E}^{act}({}^{40}\text{K})$
pohjasedimentti						
11465Z	0,7	1,08	0,756	972,2 Bq	907,7 Bq	-6,61 %
11757X	1,2	1,74	2,09	565,6 Bq	521,5 Bq	-7,78 %
11428E	1,9	0,63	1,2	753,8 Bq	691,0 Bq	-8,33 %
10944D	1,1	0,69	0,759	805,9 Bq	749,8 Bq	-6,95 %
maito						
12455Ck	2,5	0,58	1,45	49,9 Bq	46,1 Bq	-7,52 %
12122F	2,5	0,53	1,325	50,7 Bq	46,2 Bq	-8,95 %
11660Fk	2,5	0,58	1,45	50,0 Bq	45,5 Bq	-8,95 %
lasikuitusuodatin						
13253C	0,3	0,7	0,21	89,7 μBq	85,2 μBq	-5,02 %
13214F	0,3	0,7	0,21	85,9 μBq	81,6 μBq	-5,01 %
13516R	0,3	0,7	0,21	97,7 μBq	92,8 μBq	-5,02 %
12427U	0,3	0,7	0,21	200,9 μBq	196,4 μBq	-2,24 %
aktiivihiilisuodatin						
12708D	1,1	0,8	0,88	133,7 μBq	122,8 μBq	-8,15 %
12426T	1,1	0,8	0,88	238,0 μBq	219,9 μBq	-7,98 %
13264R	1,1	0,8	0,88	118,3 μBq	110,4 μBq	-6,68 %
12792D	1,1	0,8	0,88	103,5 μBq	95,1 μBq	-8,12 %
liha						
12804T	2,5	0,75	1,88	115,0 Bq	104,9 Bq	-8,83 %
12803S	2,5	0,81	2,03	108,4 Bq	98,7 Bq	-8,89 %
12743W	2,5	0,92	2,3	112,9 Bq	103,9 Bq	-8,77 %
12742U	2,5	0,9	2,25	102,6 Bq	93,55 Bq	-8,80 %

Taulukko 20: $\Delta_{A \rightarrow E}^{act}({}^{137}\text{Cs})$ W-purkissa luvun 9 analyysien tuloksissa.

Näyte	$h(\text{cm})$	$\rho(\frac{\text{g}}{\text{cm}^3})$	$\rho \cdot h (\frac{\text{g}}{\text{cm}^2})$	$A({}^{40}\text{K})_A$	$A({}^{40}\text{K})_E$	$\Delta_{A \rightarrow E}^{act}({}^{40}\text{K})$
pohjasedimentti						
11465Z	0,7	1,08	0,756	12336,5 Bq	11598,5 Bq	-5,98 %
11757X	1,2	1,74	2,09	130,0 Bq	119,9 Bq	-7,73 %
11428E	1,9	0,63	1,2	304,8 Bq	278,9 Bq	-8,52 %
10944D	1,1	0,69	0,759	366,6 Bq	342,4 Bq	-6,61 %
maito						
12122F	2,5	0,53	1,325	0,325 Bq	0,294 Bq	-9,46 %
11660Fk	2,5	0,58	1,45	0,204 Bq	0,185 Bq	-9,44 %
lasikuitusuodatin						
13253C	0,3	0,7	0,21	2,3 μBq	2,2 μBq	-4,35 %
13214F	0,3	0,7	0,21	1,8 μBq	1,7 μBq	-5,56 %
13516R	0,3	0,7	0,21	0,7 μBq	0,7 μBq	-0,0 %
12427U	0,3	0,7	0,21	1,3 μBq	1,4 μBq	-7,69 %
liha						
12804T	2,5	0,75	1,88	57,1 Bq	51,9 Bq	-9,07 %
12803S	2,5	0,81	2,03	677,6 Bq	614,4 Bq	-9,34 %
12743W	2,5	0,92	2,3	5,48 Bq	4,98 Bq	-9,14 %
12742U	2,5	0,9	2,25	10,0 Bq	9,1 Bq	-9,26 %

Taulukko 21: $\Delta_{B \rightarrow G}^{act}(^{214}\text{Pb})$ T-purkissa

Näyte	$h(\text{cm})$	$\rho(\frac{\text{g}}{\text{cm}^3})$	$\rho \cdot h (\frac{\text{g}}{\text{cm}^2})$	$A(^{40}\text{K})_B$	$A(^{40}\text{K})_G$	$\Delta_{B \rightarrow G}^{act}(^{40}\text{K})$
maaperä						
11808G	2,6	0,44	1,144	164,8 Bq	198,8 Bq	+20,63 %
11807F	2,6	0,33	0,858	227,6 Bq	263,3 Bq	+15,69 %
11028D	2,6	1,06	2,756	46,14 Bq	63,90 Bq	+38,50 %
11480S	2,7	0,31	0,837	152,6 Bq	230,0 Bq	+15,16 %
13299G	2,1	1,29	2,709	13,09 Bq	22,00 Bq	+68,09 %
11796T	2,6	0,65	1,69	77,44 Bq	101,1 Bq	+30,59 %
pohjasedimentti						
12106M	1,0	0,88	0,88	115,6 Bq	144,6 Bq	+25,09 %
12541E	2,5	0,62	1,55	205,3 Bq	554,2 Bq	+23,81 %
12540D	2,6	0,73	1,898	196,4 Bq	247,9 Bq	+26,23 %
12086N	1,3	0,77	1,001	173,8 Bq	214,6 Bq	+23,36 %
12090T	1,3	0,81	1,053	237,1 Bq	292,5 Bq	+23,43 %
11305H	2,7	0,65	1,755	83,20 Bq	102,6 Bq	+23,31 %
11302E	2,7	0,70	1,89	125,0 Bq	157,5 Bq	+25,98 %
12643B	1,8	0,47	0,846	138,4 Bq	164,4 Bq	+18,78 %
12677S	2,6	0,56	1,456	240,2 Bq	283,8 Bq	+18,15 %
11430G	1,4	0,72	1,008	199,9 Bq	244,3 Bq	+22,22 %
13056T	1,5	0,31	0,465	254,1 Bq	291,9 Bq	+14,89 %
11296Y	2,7	0,69	1,863	161,1 Bq	198,4 Bq	+23,20 %
11320B	2,7	0,59	1,593	124,4 Bq	151,6 Bq	+21,89 %
12289E	0,2	0,57	0,114	0,039 Bq	2,6 mBq	+8,33
sieni						
12052Y	2,6	0,72	1,872	0,635 Bq	0,656 Bq	+3,36 %

Taulukko 22: $\Delta_{B \rightarrow G}^{act}(^{137}\text{Cs})$ T-purkissa

Näyte	$h(\text{cm})$	$\rho(\frac{\text{g}}{\text{cm}^3})$	$\rho \cdot h (\frac{\text{g}}{\text{cm}^2})$	$A(^{40}\text{K})_B$	$A(^{40}\text{K})_G$	$\Delta_{B \rightarrow G}^{act}(^{40}\text{K})$
maaperä						
11808G	2,6	0,44	1,114	566,7 Bq	551,0 Bq	-2,77 %
11807F	2,6	0,33	0,858	376,3 Bq	368,4 Bq	-2,08 %
11028D	2,6	1,06	2,756	0,531 Bq	0,540 Bq	+1,58 %
11480S	2,7	0,31	0,837	247,4 Bq	241,8 Bq	-2,28 %
13299G	2,1	1,29	2,709	1,239 Bq	1,214 Bq	-2,00 %
11796T	2,6	0,65	1,690	156,3 Bq	153,1 Bq	-2,01 %
pohjasedimentti						
12106M	1,0	0,88	0,880	15,51 Bq	15,87 Bq	+2,29 %
12541E	2,5	0,62	1,550	277,9 Bq	272,8 Bq	-1,84 %
12540D	2,6	0,73	1,898	277,7 Bq	272,0 Bq	-2,03 %
12086N	1,3	0,77	1,001	634,9 Bq	646,5 Bq	+1,83 %
12090T	1,3	0,81	1,053	655,8 Bq	669,4 Bq	+2,07 %
11305H	2,7	0,65	1,755	75,09 Bq	73,47 Bq	-2,15 %
11302E	2,7	0,70	1,890	311,8 Bq	304,1 Bq	-2,48 %
12643B	1,8	0,47	0,846	151,0 Bq	152,8 Bq	+1,22 %
12677S	2,6	0,56	1,456	168,9 Bq	165,7 Bq	-1,88 %
11430G	1,4	0,72	1,008	234,4 Bq	237,8 Bq	+1,45 %
13056T	1,5	0,31	0,465	147,3 Bq	150,6 Bq	+2,20 %
11296Y	2,7	0,69	1,863	218,1 Bq	213,1 Bq	-2,30 %
11320B	2,7	0,59	1,593	589,0 Bq	574,9 Bq	-2,40 %
kala						
13039Y	2,6	0,86	2,236	3,263 Bq	3,230 Bq	-1,02 %
13022C	2,6	0,86	2,184	11,40 Bq	11,30 Bq	-0,90 %
12994U	2,6	0,84	2,002	2,535 Bq	2,507 Bq	-1,08 %
vesi						
12289E	0,2	0,57	0,114	0,012 Bq	0,012 Bq	-3,28 %
sieni						
12052Y	2,6	0,72	1,872	89,99 Bq	88,35 Bq	-1,82 %
12051X	2,6	0,73	1,898	45,83 Bq	45,08 Bq	-1,63 %
12045P	2,6	0,69	1,794	429,7 Bq	422,5 Bq	-1,67 %
liha						
13372U	2,6	0,67	1,742	1,638 Bq	1,632 Bq	-0,37 %

Taulukko 23: $\Delta_{B \rightarrow G}(^{40}\text{K})$ T-purkissa

Näyte	$h(\text{cm})$	$\rho(\frac{\text{g}}{\text{cm}^3})$	$\rho \cdot h (\frac{\text{g}}{\text{cm}^2})$	$A(^{40}\text{K})_B$	$A(^{40}\text{K})_G$	$\Delta_{B \rightarrow G}^{act}(^{40}\text{K})$
maaperä						
11808G	2,6	0,44	1,144	187,2 Bq	182,8 Bq	-2,39 %
11807F	2,6	0,33	0,858	164,4 Bq	160,8 Bq	-2,2 %
11028D	2,6	1,06	2,756	698,0 Bq	683,9 Bq	-2,03 %
11480S	2,7	0,31	0,837	236,4 Bq	230,0 Bq	-2,71 %
11796T	2,6	0,65	1,69	407,4 Bq	398,3 Bq	-2,23 %
pohjasedimentti						
12106M	1,0	0,88	0,88	1065 Bq	1088 Bq	+2,16 %
12541E	1,2	1,74	2,09	565,6 Bq	521,5 Bq	-7,78 %
12540D	1,9	0,63	1,2	753,8 Bq	691,0 Bq	-8,33 %
12086N	1,1	0,69	0,76	805,9 Bq	749,8 Bq	-6,95 %
12090T	1,9	0,63	1,2	753,8 Bq	691,0 Bq	-8,33 %
11305H	1,1	0,69	0,76	805,9 Bq	749,8 Bq	-6,95 %
11302E	2,5	0,58	1,45	49,9 Bq	46,1 Bq	-7,52 %
12643B	2,5	0,53	1,33	50,7 Bq	46,2 Bq	-8,95 %
12677S	2,5	0,58	14,5	50,0 Bq	45,5 Bq	-8,95 %
11430G	2,5	0,75	14,5	115,0 Bq	104,9 Bq	-8,83 %
13056T	2,5	0,81	2,03	108,4 Bq	98,7 Bq	-8,89 %
11296Y	2,5	0,92	2,30	112,9 Bq	103,0 Bq	-8,77 %
11320B	2,5	0,90	2,25	102,6 Bq	93,5 Bq	-8,80 %
12677S	2,6	0,56	1,456	721,1 Bq	711,5 Bq	-1,37 %
11430G	1,4	0,72	1,008	892,1 Bq	902,5 Bq	+1,16 %
13056T	1,5	0,31	0,465	767,8 Bq	783,5 Bq	+2,04 %
11296Y	2,7	0,69	1,863	773,7 Bq	753,5 Bq	-2,60 %
11320B	2,7	0,59	1,593	794,9 Bq	774,7 Bq	-2,55 %
kala						
13039Y	2,6	0,86	2,236	112,7 Bq	112,4 Bq	-0,23 %
13022C	2,6	0,84	2,184	92,49 Bq	92,39 Bq	-0,11 %
12994U	2,6	0,77	2,002	93,40 Bq	93,24 Bq	-0,16 %
vesi						
12550Ro	2,6	0,99	2,574	10,33 Bq	10,20 Bq	-1,18 %
12907R	0,6	0,97	0,582	302,6 Bq	319,8 Bq	+5,70 %
12289E	0,2	0,57	0,114	0,039 Bq	0,036 Bq	-7,61 %
sieni						
12052Y	2,6	0,72	1,872	73,02 Bq	72,01 Bq	-1,38 %
12051X	2,6	0,73	1,898	50,72 Bq	50,14 Bq	-1,16 %
12045P	2,6	0,69	1,794	50,10 Bq	49,43 Bq	-1,33 %
liha						
13372U	2,6	0,67	1,742	111,5 Bq	111,8 Bq	+0,2 %